

Title	流体中磁性微粒子の非接触磁気駆動に関する研究(Dissertation_全文)
Author(s)	徳良, 晋
Citation	Kyoto University (京都大学)
Issue Date	2014-03-24
URL	<a href="http://dx.doi.org/10.14989/doctor.k18279">http://dx.doi.org/10.14989/doctor.k18279</a>
Right	
Type	Thesis or Dissertation
Textversion	ETD

# 流体中磁性微粒子の非接触磁気駆動 に関する研究

徳良 晋

2014 年

# 目次

第 1 章 緒論.....	1
1.1 本研究の背景 .....	1
1.1.1 磁性微粒子駆動.....	1
1.1.2 微粒子の駆動に関する用語の定義 .....	3
1.1.3 磁性微粒子挙動や非接触磁気駆動に関する従来の研究と課題.....	5
1.2 本研究の目的 .....	8
1.3 本論文の構成 .....	8
第 2 章 時間変動する磁界下における磁性微粒子挙動の可視化 .....	13
2.1 本章の背景と狙い .....	13
2.2 ナノ～マイクロオーダー粒子挙動の可視化装置と実験方法.....	16
2.3 ナノ～マイクロオーダー粒子挙動の可視化実験結果.....	21
2.3.1 ナノ～マイクロオーダー粒子挙動の可視化 .....	21
2.3.2 時間変動する磁界下におけるマイクロオーダー磁性粒子挙動の可視化 ..	26
2.4 本章のまとめ.....	34
第 3 章 磁性微粒子の非接触磁気把持と作用力評価.....	36
3.1 本章の背景と狙い .....	36
3.2 封止された流体セル中における磁性微粒子の非接触磁気把持と作用力評価 .....	38
3.2.1 封止流体セル中における磁性微粒子の非接触磁気把持用磁気駆動装置	38
3.2.2 磁性微粒子の非接触磁気把持方法と作用する力のリアルタイム評価方法	49
3.2.3 磁性微粒子挙動の可視化、及び粒子トラッキング結果 .....	56
3.2.4 磁性微粒子の非接触磁気把持とリアルタイム作用力評価結果.....	57
3.3 非接触磁気操作に向けた流速制御可能な流体セル中における作用力評価 .....	70
3.3.1 流速制御可能な流体セル中における磁性微粒子駆動装置 .....	70
3.3.2 磁性微粒子に作用する力のリアルタイム評価方法 .....	73

3.3.3 磁性微粒子に作用する力のリアルタイム評価結果 .....	78
3.4 本章のまとめ .....	88
第 4 章 磁性微粒子の非接触磁気操作 .....	91
4.1 本章の背景と狙い .....	91
4.2 非接触磁気操作に必要な力の分析 .....	92
4.2.1 非接触磁気操作に必要な力の分析方法 .....	92
4.2.2 非接触磁気操作に必要な力の分析結果 .....	93
4.3 磁性微粒子の磁気ガイド .....	102
4.3.1 磁性微粒子挙動 .....	102
4.3.2 磁気ガイド方法 .....	105
4.3.3 磁気ガイド結果 .....	107
4.4 クラスタ化磁性微粒子の磁気分離 .....	115
4.4.1 クラスタ化磁性微粒子の磁気分離条件の探索方法 .....	116
4.4.2 クラスタ化磁性微粒子の磁気分離結果 .....	119
4.5 磁性微粒子の磁気捕集と磁気攪拌 .....	138
4.5.1 磁気捕集と磁気攪拌方法 .....	138
4.5.2 磁気捕集と磁気攪拌結果 .....	141
4.6 本章のまとめ .....	144
第 5 章 高磁界下における磁性微粒子の挙動と非接触磁気駆動の可能性 .....	147
5.1 本章の背景と狙い .....	147
5.2 高磁界下における磁性微粒子の挙動 .....	148
5.2.1 高磁界下における磁性微粒子挙動の評価装置 .....	148
5.2.2 高磁界下における磁性微粒子挙動の評価方法 .....	158
5.2.3 高磁界下における磁性微粒子挙動の評価結果 .....	160
5.3 高磁界下における磁性微粒子の非接触磁気駆動の可能性 .....	172
5.3.1 ナノオーダー磁性粒子の挙動評価と非接触磁気駆動への展望 .....	172



5.3.2 粒子挙動解析手法 .....	174
5.3.3 高磁界下における磁性微粒子の非接触磁気操作解析条件 .....	186
5.3.4 高磁界下における磁性微粒子の非接触磁気操作解析結果 .....	187
5.4 本章のまとめ.....	191
第 6 章 総括.....	194
謝辞 .....	199
研究業績 .....	200

# 第 1 章 緒論

## 1.1 本研究の背景

### 1.1.1 磁性微粒子駆動

磁性体である磁鉄鉱（マグネタイト、 $\text{Fe}_3\text{O}_4$ ）は紀元前から産出されており、鉄を引き付けることがすでに知られていた（図 1-1）。この磁鉄鉱は、中国三大発明の一つである羅針盤に活用されていたことでも有名である。一方で、磁性体に関する先駆的で体系的な研究としては 17 世紀初めのウィリアム・ギルバートによる「磁石論」が有名である。そして、19 世紀に発表されたマイケル・ファラデーの「電磁誘導の法則」、ジェイムズ・クラーク・マクスウェルの「マクスウェルの方程式」以降、ピエール・キュリーとピエール・ワイスによる「キュリー・ワイスの法則」やポール・ランジュバンによる「常磁性理論」など磁性に対する研究が飛躍的に進んだ。工学的には 19 世紀末のヴォルデマール・ポールセンによって磁気記録の原理が明らかにされて以降、磁気記録技術が急速に発展し、近年では高密度磁気記録媒体への応用が期待されるナノ磁性微粒子  $\text{FePt}$  の物性や製造法に関する研究<sup>1), 2)</sup>など数多く報告されている。また、ナノ～マイクロオーダーの磁性体は印刷機に使われるトナーのキャリア<sup>3)</sup>、あるいは汚泥に磁性体を混合させ浄化する磁気分離<sup>4)</sup>などにも応用されている。さらに、近年では薬と複合化させて磁気力で患部に運ぶドラッグデリバリー<sup>5)</sup>、<sup>6)</sup>や DNA・タンパク質<sup>7)</sup>・ウイルス・細胞<sup>8)</sup>と複合化させて検出や培養する技術などバイオ・医療分野における応用を想定した様々な磁性微粒子の研究が報告されている<sup>9) - 13)</sup>。例えばこれらバイオ・医療分野における応用では、磁気力で非接触に対象物をハンドリングできる点に着目し、化学的に安定で毒性の低いマグネタイトを細胞に接着させて二次元や三次元的に培養する研究<sup>14)</sup>や、再生血管の臨床応用を目指してチューブ状の担体に磁気力を利用して細胞を接着させて培養する研究<sup>15)</sup>などにおいて、磁性微粒子の多次元的な磁気駆動技術が求められている。

このような事例に見られるナノ～マイクロオーダーの磁性体は主に流体中において扱われる。図 1-2 で示したように、ナノ～マイクロオーダーの磁性体を、磁界を使って駆動させる場合、外部磁界で生じる磁気力が小さいため、相対的に重力や浮力の他に流体抵抗、磁気トルク、粒子間に作用する静電気力、摩擦力、あるいは磁気双極子モーメントによる磁界、ブラウン運動などの影響を受けやすい。また、特にナノオーダーの粒子は自然凝集

する性質を持つ。

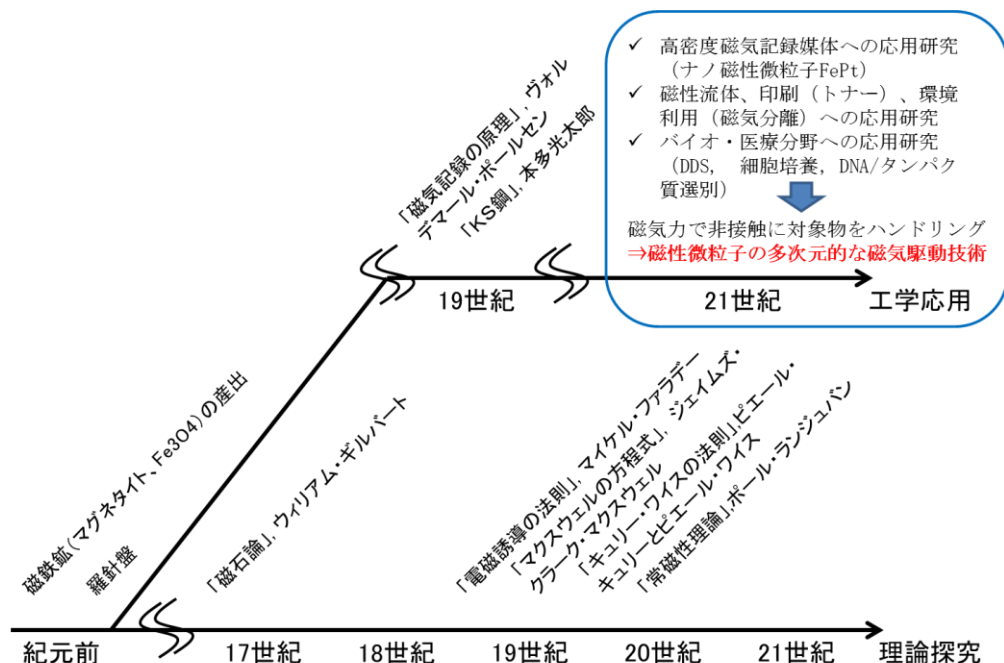


図 1-1 「磁性」に関する理論的な探究や工学的な応用の歴史

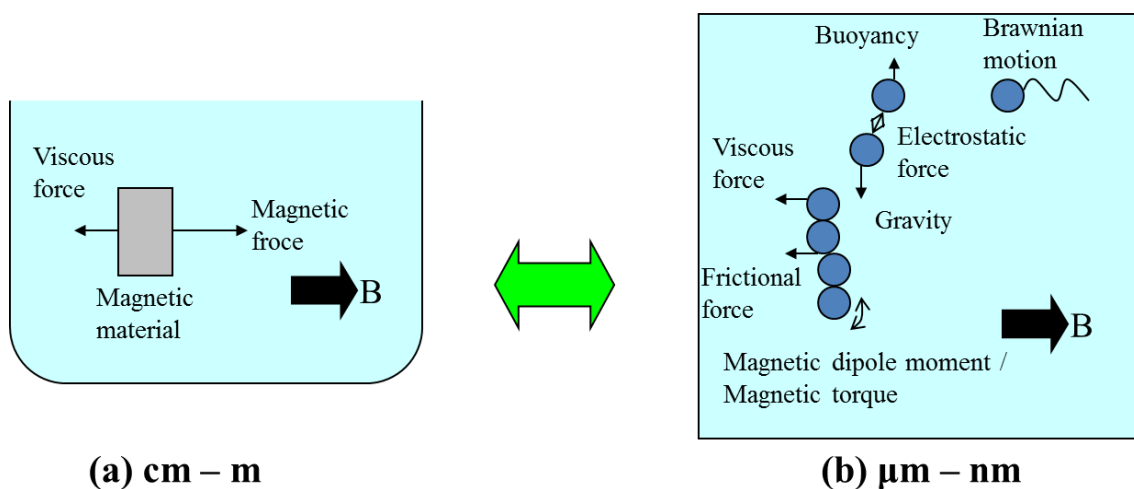


図 1-2 ナノ～マイクロオーダーの磁性体に作用する力や場。(a)ハンドリング容易な cm オーダー以上のサイズの強磁性体を対象として、流体中において非接触で磁界を使って駆動する場合は、重力に比べて十分に大きな磁気力を発生させることが容易。(b)目視困難な nm –  $\mu\text{m}$  オーダーの磁性微粒子を対象として、流体中において非接触で磁界を使って駆動する場合は、対象物の磁化が小さく、磁気力に比べて相対的に重力、浮力、流体抵抗、磁気双極子場やブラウン運動の影響が大きくなる。

図 1-3 には理論式や経験式をもとに、流体中の磁性微粒子に作用する力の粒子径による変化を示した。粒子径 1000  $\mu\text{m}$  においては、作用力の大きいものから順に、外部磁界による磁気力、粒子間に作用する磁気力、重力、浮力、流体抵抗、光圧、静電力となっている。これらの大きさは条件によって上下するが、例えば 1000  $\mu\text{m}$  オーダーでは磁気力が支配的であるのに対して、数マイクロオーダーでは相対的に粒子間磁気力や流体抵抗などが支配的になっており、さらに数十～数百ナノオーダーではブラウン運動や静電力なども無視できなくなってくる。このようなナノ～マイクロオーダーの磁性微粒子を想定通りに磁気駆動するためには、まずその挙動や作用力の影響範囲や大きさなどを把握することが必要であり、可視化技術、作用力評価技術、及び磁界磁気勾配を時間的・空間的に制御して駆動する技術が重要となる。

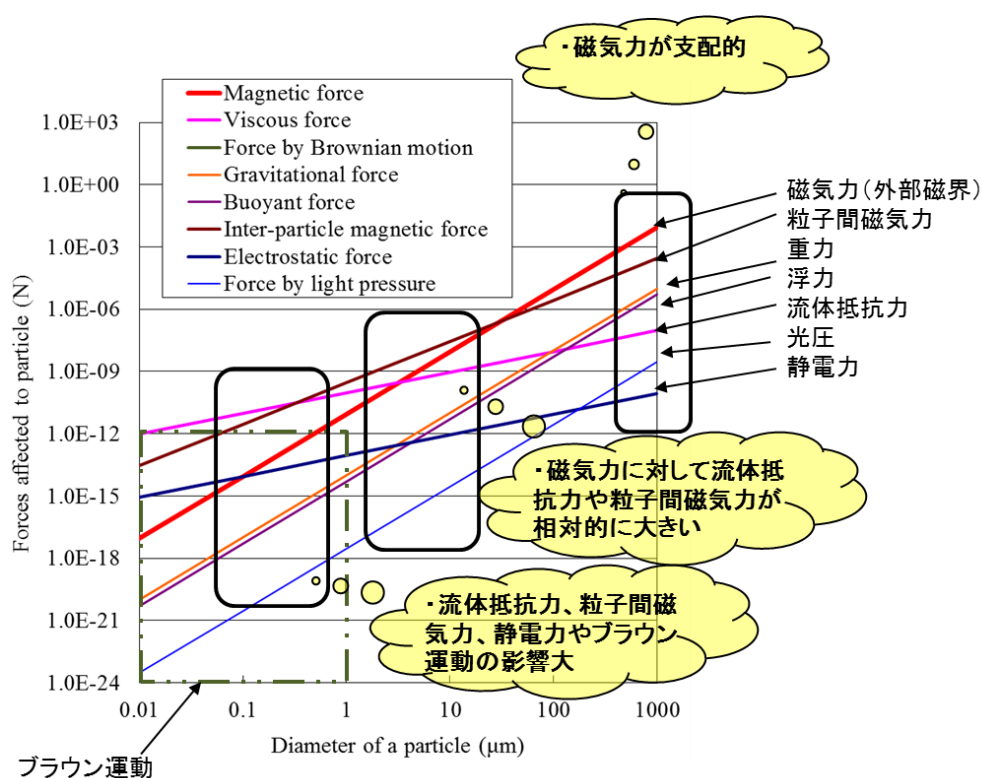


図 1-3 ナノ～マイクロオーダーの磁性体 に作用する力

### 1.1.2 微粒子の駆動に関する用語の定義

本論文を執筆するに先立ち、微粒子の駆動に関する種々の用語を表 1-1 のように定義する。微粒子の駆動に関する最も上位の概念を「磁性微粒子駆動」と定義する。駆動源は様々

で、磁気力や静電気力やレーザなどを使った非接触駆動が考えられる。そこで、「磁性微粒子駆動」の下位に、「非接触磁気駆動」と「その他の非接触駆動」を位置付ける。永久磁石や電磁石によって作られる磁界と磁気勾配による駆動を「非接触磁気駆動」と分類し、静電力やレーザなど磁界以外を使う駆動を「その他の非接触駆動」と分類する。そして、「非接触磁気駆動」を大きく「非接触磁気把持」と「非接触磁気操作」の二つに分類する。ここで、「非接触磁気把持」は、磁性微粒子の座標を指標として磁気力を水平垂直方向に制御することで、磁性微粒子を静止させることを表す。他方、「非接触磁気操作」は、磁気力を磁性微粒子に作用させて移動させることを表す。さらに、「非接触磁気操作」を以下のように細分する。

表 1-1 微粒子の駆動に関する用語の定義

磁性微粒子駆動				
	非接触磁気駆動			永久磁石や電磁石によって作られる磁界と磁気勾配による磁気力を利用した非接触駆動
		非接触磁気把持		位置制御によって磁性微粒子を空間中に静止
		非接触磁気操作		磁性微粒子を磁気力で移動
			磁気ガイド	位置制御によって磁性微粒子を任意の場所へ意図する軌跡で誘導
			磁気分離	磁気力によって磁性材料と非磁性材料、あるいは凝集している磁性材料を分離
			磁気捕集	磁気力によって溶媒中の磁性材料を特定の場所に収集
			磁気攪拌	磁気力によって溶媒中の磁性材料を攪拌
	その他の非接触駆動			静電力、レーザなどを利用した非接触駆動

「磁気ガイド」は、磁性微粒子の座標を指標として磁気力を水平垂直方向に制御することで、磁性微粒子を任意の場所へ任意の軌跡で誘導することを表す。

「磁気分離」は、非接触磁気駆動によって磁性材料（磁性微粒子など）と非磁性材料（非磁性微粒子など）を分離すること、あるいは凝集している磁性微粒子などを分散させることを表す。

「磁気捕集」は、非接触磁気駆動によって溶媒中の磁性材料（磁性微粒子など）を特定の場所に集めることを表し、その一つ的手段として、磁極に吸引させることが考えられる。

「磁気攪拌」は、非接触磁気駆動によって溶媒中の磁性材料（磁性微粒子など）を攪拌することを表す。

また、本論文において磁性微粒子駆動を検討するにあたっては、MKSA (SI) 単位系、か

つ、 $\mathbf{E}-\mathbf{B}$  対応に準拠した表記を採用する。一例として、代表的な記号と単位は次の通りである。磁化は  $\mathbf{M}$  (A/m), 磁気モーメントは  $\mathbf{P}$  (Am<sup>2</sup>), 磁界は  $\mathbf{H}$  (A/m), 真空透磁率は  $\mu_0$  (H/m), 磁化率は  $\chi$ , 磁束密度は  $\mathbf{B}$  (T)となる。なお、材料物性など参考にその他の単位系を用いる場合は、都度、記号を併記する。

$$\mathbf{B} = \mu_0 \mathbf{H} + \mathbf{P} = \mu_0 \mathbf{H} + \mu_0 \mathbf{M} \quad (1-1)$$

### 1.1.3 磁性微粒子挙動や非接触磁気駆動に関する従来の研究と課題

1.1.1 項の最後で述べたように、流体中では微粒子には様々な力や場が作用しているが、磁性微粒子の物性や形状や相対位置などによって磁性微粒子に対する作用力や場の影響度が増えるため、外部磁界作用下の磁性微粒子単体（あるいは微小クラスター）の挙動を予測し想定どおりに非接触磁気駆動させることは容易ではない。

磁性微粒子の挙動把握や駆動をテーマとした過去の基礎的な研究を、粒子サイズと粒子に作用させた磁界を指標に図 1-4 にまとめた<sup>3), 16) - 28)</sup>。ここで、白抜きマークは理論検討を主体とした研究を表し、中塗りのマークは実験検討を主体とした研究を表す。また、赤色のマークは磁気分離や結合した磁性体（永久磁石）どうしの切断<sup>16)</sup>に関する研究、青色のマークはドラッグデリバリーに見られるような磁気力によって所定の場所に磁性微粒子を吸引したときの捕集量や効率を指標とした研究、そしてピンク色のマークは磁界を磁性微粒子に印加した際の粒子凝集性やチェーンクラスター化する挙動を把握する研究である。以下でいくつかの典型的な研究例を紹介する。

図 1-4 において、粒子径約 500 nm、作用磁界が約 0.25 T にプロットされているのは磁気泳動マイクロシステムについての研究であり、マイクロチャネル内の粒子輸送と磁気力捕獲の可否を解析的に検討した事が報告されている<sup>28)</sup>。粒子径約 2 μm、作用磁界が約 8 T にプロットされているのはドラッグデリバリーについての研究であり、血管の分岐部で目的の方向に磁性微粒子を誘導する方法について解析的に検討した事が報告されている<sup>22)</sup>。粒子径約 3 μm、作用磁界が約 10 T にプロットされているのは励磁下の磁性微粒子挙動のシミュレーションに関する研究であり、磁性微粒子の鎖状、柱状構造の生成過程を FEM と DEM を用いて解析した事が報告されている<sup>24)</sup>。粒子径 5 μm、作用磁界が約 0.5 T にプロットされているのはドラッグデリバリーについての研究であり、粒子が磁場源に付着することで磁極形状が変わる事と関係付けて、粒子捕獲と粒子軌道の経時変化や効果を解析的に検討し報告されている<sup>20)</sup>。

以上は解析が主体の研究であった。一方、粒子径約 50 μm、作用磁界が約 10 T にプロッ

トされているのは磁気ブラシ現象についての研究であり、磁気ブラシの生成パターンを実験的に観察し、解析を併用しつつ凝集や配向整列の現象解明が報告されている<sup>3)</sup>。粒子径約 1000  $\mu\text{m}$ 、作用磁界が約 6 T にプロットされているのは超電導電磁石発生磁界内でのチェーン形成観察についての研究であり、筒につめた常磁性や反磁性物質など磁化の弱い磁性体を対象に吸引力や斥力による粒子群の移動やチェーン形成の実験的な観察結果が報告されている<sup>25)</sup>。

これらの先行研究の傾向としては、粒子サイズが 1  $\mu\text{m}$  付近でかつ磁束密度が 0.1 T 以上の条件では解析検討が主体となっており、比較的可視化が容易な 100  $\mu\text{m}$  – 1 mm 付近では実験検討が主体となっている。なお、実験検討主体の研究で 10  $\mu\text{m}$  以下のものがある。これらの研究では用いた粒子の大きさが 10  $\mu\text{m}$  以下であっても、粒子凝集してチェーンクラスター化した状態（粒子径約 10  $\mu\text{m}$ 、作用磁界が約 0.08 T）<sup>18)</sup>や、ろ過効率（粒子径約 5  $\mu\text{m}$ 、作用磁界が約 6 T）<sup>27)</sup>や磁気捕集できた重量（粒子径約 2  $\mu\text{m}$ 、作用磁界が約 0.25 T）<sup>17)</sup>、（粒子径約 20 nm、作用磁界が約 0.4 T）<sup>23)</sup>などを評価しているため、粒子一つ一つの挙動に着目した研究を行っているわけではない。また、磁性粒子の挙動に着目した研究としては、静磁界下や回転磁界中でのシャーレ上での磁性微粒子の動き（粒子径約 1  $\mu\text{m}$ 、作用磁界が約 0.03 T）<sup>26)</sup>を顕微鏡下のプレパラート上で観察したものが報告されている<sup>13), 29)</sup>。

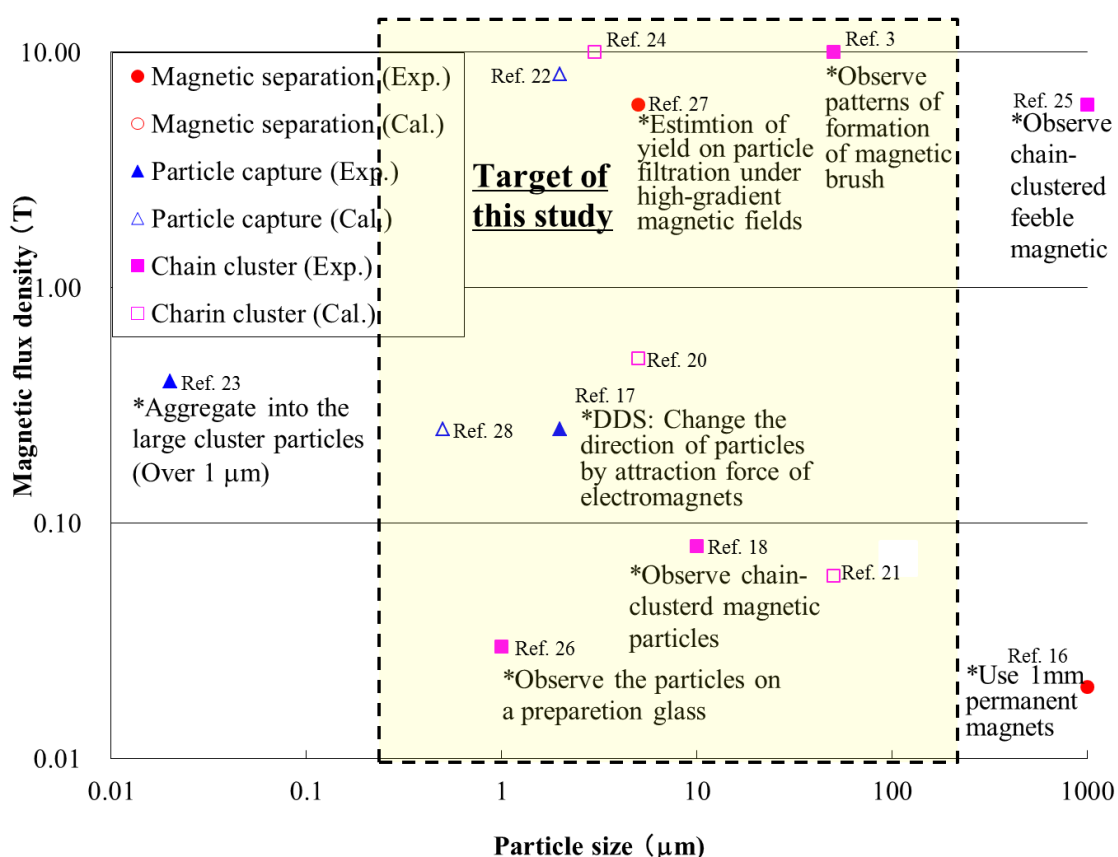


図 1-4 粒子サイズと磁性微粒子に印加する磁束密度を指標とした先行研究マップ。表中、点線で四角に囲われたエリアは本研究で対象としている範囲 (Target of this study) を表す。先行研究のうち、鎖状クラスタ観察 (Chain cluster, Exp.)<sup>3), 18), 25), 26)</sup>では、プレパラート上のクラスタ粒子群を対象とした暗視野顕微鏡／光学顕微鏡や CCD カメラによる観察として実験主体、磁気捕集 (Particle capture, Exp.)<sup>17), 23)</sup>や磁気分離 (Magnetic separation, Exp.)<sup>16), 27)</sup>では、個々の粒子に着目するのではなく、クラスタ化した粒子群全体を対象として磁気力で吸引する試みとして実験主体、解析検討では、ナノオーダー粒子も対象とされており、ドラッグデリバリーなどの磁気捕集 (Particle capture, Cal.)<sup>22), 28)</sup>や鎖状形成 (Chain cluster, Cal.)<sup>20), 21), 24)</sup>の模擬などが主体。

このように過去の研究においては、個々の磁性微粒子のレベルまで掘り下げて、その挙動を実験的に可視化し非接触磁気駆動した研究例は少ない。

ナノ～マイクロオーダーの磁性微粒子挙動を可視化する技術、磁性微粒子の挙動に影響する磁気力以外の力を実時間で計測する技術、さらに磁界／磁気勾配を時間的・空間的に制



御し磁性微粒子を磁気駆動する技術のいずれが欠けても磁性微粒子単体（あるいは微小クラスタ）を想定通りに非接触磁気駆動することはできない。これまでは、これらの技術要件を全て満たした実験を行うことが困難であったために、数値解析を利用した理論的な検討が主体となっており、粒子単体（あるいは微小クラスタ）の挙動の実測に基づいた非接触磁気駆動の実例はない。

## 1.2 本研究の目的

本研究では、磁気駆動用電磁石の磁極間の狭隘な空間に適用可能な、個々の磁性微粒子や微小クラスタの可視化技術を構築し、粒子径、粘度、流速、磁界強度、磁気特性、濃度（粒子間距離）等の値が変化した場合の粒子挙動や粒子に対する作用力を体系的に明らかにすること、そしてそれらの知見に基づいた、流体中のナノ～マイクロオーダーの磁性微粒子の選択的な磁気ガイドや結合した磁性微粒子の磁気分離、または磁気捕集後の磁気攪拌による粒子分散といった非接触磁気駆動を実証することを目的とする。

## 1.3 本論文の構成

これらの背景及び目的を踏まえ、本論文は以下のような構成とする。

第 2 章では、外部磁界作用下で狭隘な空間におけるナノ～マイクロオーダーの磁性微粒子挙動をリアルタイムに可視化する光学システムを構築する。ここでは、磁性微粒子がシャーレなど静置された状態でなく、流体中に浮遊、流動している状態を可視化することを目指す。また、第 5 章を除き、本論文全体にわたる実験的手法では、マイクロオーダーの磁性微粒子を主に対象とするが、将来的にナノオーダーの磁性粒子の非接触磁気駆動を実現するために、可視化手法としては回折光を観察する白色光源による方法だけでなく、光源の波長以下のナノオーダー磁性粒子の散乱光を観察して粒子挙動をとらえることが可能なレーザ光源による方法も適用する。

第 3 章では、前章で構築した磁性微粒子の可視化手法に加え、水平／垂直方向に空間的かつ時間的に変動可能な磁界を発生させることができる磁性微粒子の磁気駆動用電磁石を製作する。これらを組み合わせることで、磁性微粒子を含んだ流体を封止したセル（流体セル）中のマイクロオーダー磁性粒子の非接触磁気把持を実現する。また、この非接触磁

気把持技術を応用し、磁性微粒子に作用する力や場の影響をリアルタイムに計測する方法を確立する。これによって、理論計算で評価しにくい流体抵抗力や、隣接する磁性微粒子が作る磁界による粒子間磁気力といった作用力を実測可能とする。また、粒子径、粘度、流速、磁界強度、磁気特性、濃度（粒子間距離）等の値が変化した場合の粒子挙動や粒子に対する作用力を計測し、マイクロオーダーの磁性微粒子に作用する支配的な力が何であるか、あるいはそのオーダーや影響を及ぼす範囲について明らかにする。

第4章では、はじめに前章で実施した粒子挙動や粒子に対する作用力の実測結果から、非接触磁気操作に必要な力を把握する。そしてこれらの知見に基づいた、流体中のマイクロオーダーの磁性粒子を対象とした非接触磁気操作の方法を確立する。ここでは、非接触磁気把持技術を応用し、磁性微粒子の座標を指標として磁気力を水平垂直方向に制御することで、磁性微粒子を任意の場所へ任意の軌跡で誘導する磁気ガイドを実証する。さらに、磁界を利用する磁性微粒子駆動では避けられない粒子間磁気力による凝集に関して、一度クラスタ化した磁性微粒子群に交番磁界を作用させ、流体抵抗力と磁気力とのせん断力を与えることで再度分離させる磁気分離を実証する。最後に本研究の適用先の一つであるドラッグデリバリーを模擬した磁気捕集、及びその後の磁気攪拌による粒子分散を実証する。

第5章では、磁性微粒子の磁化が磁界の大きさに応じて未飽和状態から飽和状態に遷移する領域において非接触磁気駆動する際の磁性微粒子挙動を把握するために、磁界発生装置として常伝導電磁石では発生できない高い磁界を発生できる超伝導電磁石を用いた実験について述べる。高い磁界によって磁性微粒子に作用する磁気力が大きくなるため、マイクロオーダーの強磁性微粒子のみならず、磁化の弱い磁性微粒子（ナノオーダー磁性微粒子など）も粒子挙動観察の対象とする。はじめに、第2章で検討した可視化手法に基づき、狭隘かつ遠方な空間である超伝導電磁石ボア内に対して適用可能な可視化システムを構築し、粒子挙動を実験的に把握する。市販の磁界解析コードと熱流体解析コードを連携させた解析方法を用い、超伝導電磁石発生磁界下において磁化が未飽和から飽和状態に遷移する領域で粒子挙動解析を実施し、実験結果と比較することで粒子挙動を示す要因を把握する。以上、実験と解析を組み合わせ、ナノからマイクロオーダー、及び未飽和から飽和状態に遷移する領域において磁性粒子の非接触磁気駆動の可能性や課題を示す。

最後に第6章では、本研究の成果について総括を行う。

## 参考文献

- 1) S. Sun, C. B. Murray, D. Weller, L. Folks, and A. Moser: “Monodisperse FePt Nanoparticles and Ferromagnetic FePt Nanocrystal Superlattices.”, *Science*, Vol. 287, No. 5460, pp. 1989 – 1992 (2000)
- 2) T. Osaka, T. Hachisu, A. Sugiyama, I. Kawakita, T. Nakanishi, and H. Iida: “Preparation of FePt Nanoparticles with a Narrow Size Distribution in Ionic Liquids”, *Chem. Lett.*, Vol. 37, No. 10, pp. 1034–1035 (2008)
- 3) H. Kawamoto, M. Teshima, H. Takahashi, N. Nakayama, and N. Hirota: “Formation of Magnetic Particle Chains in Ultra High Magnetic Field.”, *Trans. Jpn. Soc. Mech. Eng.*, Vol. 73, No. 725, C, pp. 305 – 311 (2007)
- 4) 酒井 保藏, 松田 祐三, 佐々木 哲也, 佐々木 貞幸: “磁化活性汚泥プロセスにおける濃厚な磁性スラッジの磁気分離装置設計に関する基本的な考え方”, *低温工学*, Vol. 46, No. 11, pp. 669 – 675 (2011)
- 5) C. Sun, J. Lee, and M. Zhang: “Magnetic nanoparticles in MR imaging and drug delivery.”, *Adv. Drug Deliv. Rev.*, Vol. 60, pp. 1252 – 1265 (2008)
- 6) S. Nishijima, S. Takeda, F. Mishima, Y. Tabata, M. Yamamoto, J. Joh, H. Iseki, Y. Muragaki, A. Sasaki, J. Kubota, and N. Saho: “A study of magnetic drug delivery system using bulk high temperature superconducting magnet.”, *IEEE Trans. Appl. Super.*, Vol. 18, No. 2, pp. 874 – 877 (2008)
- 7) N. Morishita, H. Nakagami, R. Morishita, S. Takeda, F. Mashima, B. Teranozo, S. Nishijima, Y. Kaneda, and N. Tanaka: “Magnetic nanoparticles with surface modification enhanced gene delivery of HVJ-E vector.”, *Biochem. Biophys. Res. Commun.*, Vol. 334, No. 4, pp. 1121 – 1126 (2005)
- 8) 上大介, 梅澤明弘, 渡邊昌俊: “磁性ナノ粒子を用いた iPS 細胞の誘導”, *医学のあゆみ*, Vol. 230, No. 8, pp. 495 – 499 (2009)
- 9) 田中 剛, 松永 是: “細菌を利用したナノ磁気微粒子の生産”, *磁気応用学会誌*, Vol. 28, No. 5, pp. 675 – 679 (2004)
- 10) J. J. Lai, K. E. Nelson, M. A. Nash, A. S. Hoffman, P. Yager and P. S. Stayton: “Dynamic bioprocessing and microfluidic transport control with smart magnetic nanoparticles in

- laminar-flow devices.”, *Lab Chip*, Vol. 9, No. 14, pp. 1997 – 2002 (2009)
- 11) E. P. Furlani and K. C. Ng: “Analytical model of magnetic nanoparticle transport and capture in the microvasculature.”, *Phys. Rev. E*, Vol. 73, No. 6, 061919 (2006)
  - 12) I. Ennen, V. Höink, A. Weddemann, A. Hütten, J. Schmalhorst, and G. Reiss: “Manipulation of magnetic nanoparticles by the strayfield of magnetically patterned ferromagnetic layers.”, *J. Appl. Phys.*, Vol. 102, No. 1, 013910 (2007)
  - 13) K. Keshoju, H. Xing, and L. Sun: “Magnetic field driven nanowire rotation in suspension.”, *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 91, No. 12, 123114 (2007)
  - 14) A. Ito, Y. Takizawa, H. Honda, K. Hata, H. Kagami, M. Ueda, and T. Kobayashi: “Tissue engineering using magnetite nanoparticles and magnetic force: heterotypic layers of cocultured hepatocytes and endothelial cells.”, *Tissue Eng.*, Vol. 10, No. 5 – 6, pp. 833 – 840 (2004)
  - 15) K. Shimazu, A. Ito, M. Arinobe, Y. Murase, Y. Iwata, Y. Narita, H. Kagami, M. Ueda, and H. Honda: “Effective cell-seeding technique using magnetite nanoparticles and magnetic force onto decellularized blood vessels for vascular tissue engineering.”, *J. Biosci. Bioeng.*, Vol. 103, No. 5, pp. 472 – 478 (2007)
  - 16) 中村治貴, 石山和志: “磁気微粒子の分散を目的とした回転磁界中における微小磁石の挙動の検討”, 電気学会マグネティックス研究会資料, Vol. 2007, No. 145, pp. 33 – 36 (2007)
  - 17) F. Mishima, S. Fujimoto, S. Takeda, Y. Izumi, S. Nishijima: “Development of control system for magnetically targeted drug delivery.”, *J. Magn. Magn. Mater.*, Vol. 310, No. 2, Part 3, pp. 2883 – 2885 (2007)
  - 18) 富山幸治, 井門康司: “重力を考慮した非一様磁場中における強磁性体粒子の挙動解析”, 磁性流体連合講演会講演論文集, Vol. 2006 – 12, pp. 24 – 27 (2006)
  - 19) 福井聡, 阿部良祐, 小川純, 岡徹雄, 山口貢, 佐藤孝雄: “磁気力援用ドラッグデリバリーシステムの基礎研究 : 流れ場における磁性粒子の集積制御のための磁場分布の検討”, 電気学会超電導応用電力機器研究会資料, Vol. 2006, No. 39, pp. 23 – 28 (2006)
  - 20) X. Li, K. Yao, H. Liu, and Z. Liu: “The investigation of capture behaviors of different shape magnetic sources in the high-gradient magnetic field.”, *J. Magn. Magn. Mater.*, Vol. 311, No. 2,

pp. 481 – 488 (2007)

- 21) 栗林夏城, 五十嵐一, 本間利久: “磁場中における磁性粉体の挙動解析”, 電気学会静止器研究会資料, Vol. 2006, No. 16, pp. 35 – 42 (2006)
- 22) 三島史人, 藤本祐孝, 武田真一, 泉佳伸, 西嶋茂宏: “磁気標的型薬剤送達システムの磁石配置の検討 : 分岐部近傍の磁石の配置とその効率”, 低温工学, Vol. 41, No. 8, pp. 365 – 370 (2006)
- 23) H. Xu, T. Song, XQ. Bao, and L. Hu: “Site-directed research of magnetic nanoparticles in magnetic drug targeting.”, J. Magn. Magn. Mater., Vol. 293, No. 1, pp. 514 – 519 (2005)
- 24) 津守不二夫, 平田正道, 島進: “FEM-DEM 連成モデルによる磁場中粒子挙動解析”, 粉体および粉末冶金, Vol. 52, No. 3, pp. 194 – 198 (2005)
- 25) 高山知弘, 池添泰弘, 植竹宏往, 広田憲之, 北沢宏一: “強磁場下における弱磁性物質の誘起磁気双極子相互作用”, 日本応用磁気学会誌, Vol. 27, No. 4, pp. 299 – 302 (2003)
- 26) J. Cai, X. Li, D. Zhang, and Y. Li: “Behavior of micromagnetic particles in an opposed-poles orientation magnetic field.”, J. Magn. Magn. Mater., Vol. 246, No. 1 – 2, pp. 36 – 39 (2002)
- 27) C. Tsouris and S. Yiacoymi: “Particle flocculation and filtration by high-gradient magnetic fields.”, Sep. Sci. Technol., Vol. 32, No. 1 – 4, pp. 599 – 616 (1997)
- 28) E. P. Furlani: “Analysis of particle transport in a magnetophoretic microsystem.”, J. Appl. Phys., Vol. 99, No. 2, 024912 (2006)
- 29) V. Schaller, U. Kräling, C. Rusu, K. Petersson, and J. Wipenmyr: “Motion of nanometer sized magnetic particles in a magnetic field gradient.”, J. Appl. Phys., Vol. 104, No. 9, 093918 (2008)

# 第2章 時間変動する磁界下における磁性微粒子挙動の可視化

## 2.1 本章の背景と狙い

本研究ではナノ～マイクロオーダーの磁性微粒子の挙動の把握、及び非接触磁気駆動を目指しており、可視化手法には時間的に変動する磁界下の狭隘な空間において磁性微粒子挙動を観察可能であることが求められる。そのため、磁界発生装置と光学機器との設置上の干渉や、磁界発生装置からの漏えい磁界による光学電子機器に対する干渉を回避できる可視化システムとする必要がある。また、変動磁界下における磁性微粒子の挙動を定量的に観察するためには、同じ磁性微粒子を継続的に視野内にとどめておく必要がある。

流速や流体中の粒子速度を計測する方法として、粒子画像流速測定（PIV: Particle Image Velocimetry）法や粒子追跡（PTV: Particle Tracking Velocimetry）法が知られている。PIV法は、連続して撮影した二枚のトレーサ粒子の連続画像からトレーサ粒子の移動距離を計測し、撮影時間差で除して流体の流速を求める方法である。視野全体や局所的な平均流速を求めることが目的であることが一般的で、対象とする視野内のトレーサ粒子の速度の平均値を流速とする。また、PIV法の中でもマイクロチャネルなどマイクロデバイス内の流れを見るために、顕微鏡を用いて微小空間における速度計測に適用した手法は特にマイクロPIV法<sup>1),2)</sup>と呼ばれる。トレーサ粒子は一般的に遅い流れ場においても粒子が追従可能であるように粒子径が数百ナノメートルのものが用いられる。PIV法のように全粒子の平均速度を算出するものではなく、特定の粒子の速度、軌跡を計算する場合には特にPTV法と呼ばれる。PIV法と基本的に計算原理は同じであるが、粒子濃度が高い場合、個々の粒子の各画像間での対応づけが困難である場合が多く、はじめに広域の流速をPIV法で求めておき、個々の粒子追跡の際の移動予測を行うなど、工夫が必要となる。本研究で用いる方法は、個々の磁性微粒子の挙動を把握することを目的としているため、後者のPTV法に近い。

PIVやPTV法において、トレーサ粒子を観察するためには光源が必要となる。粒子に光を照射した場合、粒子径と光の波長との関係で回折や散乱パターンが変わることが知られている。散乱粒子直径を $D$ 、光の波長を $\lambda$ とすると、サイズパラメータ $\alpha$ は以下のように定義される。

$$\alpha = \pi \times D / \lambda$$

(2-1)

サイズパラメータ $\alpha$ が3以上である場合は回折散乱領域、0.4–3である場合はミー散乱領域、0.4未満である場合はレイリ散乱領域となる。白色光源であるハロゲンランプを用いる場合は、入射光強度が大きくないため、サイズパラメータ $\alpha$ が3以上の回折散乱領域に相当する径を持つ粒子の観察が可能となる。式 2-1 から、ハロゲンランプの波長が1  $\mu\text{m}$  前後とすると、観察可能な粒子径も波長と同じ大きさ以上であるマイクロオーダーの粒子が観察対象となる。一方、レーザ光源を用いれば、指向性が高く入射光強度を大きくすることが容易であるため、レイリ散乱領域に相当する粒子径を持つ粒子の観察が可能となる。例えば、波長 532 nm のグリーンレーザの場合、直径 1  $\mu\text{m}$  の粒子ではサイズパラメータ $\alpha$ が 5.9 となり回折散乱領域、直径 30 nm の粒子では $\alpha$ は 0.18 となりレイリ散乱領域となる。

粒子挙動の可視化に関する先行研究として、数十ナノメートル～数百ナノメートルオーダーの粒子のブラウン運動観察を、暗視野顕微鏡と PTV 法を組み合わせることで実施した事例が木倉等によって報告されている<sup>3), 4)</sup>。それ以外にも、最大 130 mT の直流磁界を励磁して流体中での磁性微粒子のクラスタ形成を観察した結果が報告されている<sup>5), 6)</sup>。これらの報告から、上述のようなレイリ散乱領域においては、散乱光を観察することによって、磁気駆動用電磁石との干渉を問題としない系であれば、ナノオーダーの粒子挙動の観察が可能であることがわかる。

図 2-1 に、粒子間相互作用と粒子径の相関、及び可視化の適用範囲を表した概念図を示す。白色光を光源とした場合のメリットとしては、①対象粒子が波長以上（数マイクロメートル以上）であれば回折散乱により物体の輪郭や凹凸などを観察しやすい、②光源の扱いが容易である、③実サイズがわかるため画像処理によって断面積を計測しやすい、などが挙げられる。しかしながらデメリットとしては、①対象物が波長以下の場合、回折散乱が生じなくなるため観察ができなくなることが挙げられる。レーザを光源とした場合のメリットとしては、対象物が波長以下の場合でも粒子径の数倍～数十倍以上に広がるレイリ散乱光を観察することによって対象物の挙動を観察することができる点が挙げられる。しかしながらデメリットとしては、①散乱光を観察するため粒子径や表面形状を直接観察することができない点が挙げられる。

本研究では、前述の可視化時の課題を回避できる簡易な光学機器構成であり、ナノ～マイクロオーダーの微粒子挙動の把握や非接触磁気駆動が可能な方法として、前述のような得失を有した白色光（ハロゲンランプ）を光源として高速度カメラとマイクロスコープと

で拡大観察する方法と、グリーンレーザを光源として高速度カメラとマイクロスコープとで拡大観察する方法の二つを候補とする。一般的に常伝導電磁石であれば、磁極間相当の距離を離すことで漏えい磁界は十分に減衰し、高速カメラ等の電子機器への電磁的な干渉を回避することができる。今回用いる構成では、軸長約 300 mm のマイクロスコープを介して像を拡大するため、電磁石にもっとも近くなると考えられる高速カメラも問題ないと考えられる。超伝導磁界下における電磁的な干渉については、第 5 章にて述べる。

同一粒子の挙動を同一視野内にて継続的に観察するための励磁条件については、重力や浮力による挙動も考慮に入れるために、観察断面は垂直平面内として、重力に逆らって鉛直上向きに牽引できるよう観察視野の上方に時間変動可能な電磁石を配置する。以上により、第 3 章以降における磁性微粒子の非接触磁気把持、作用力評価や非接触磁気駆動を実現するために必要な磁性微粒子可視化方法について検討する。

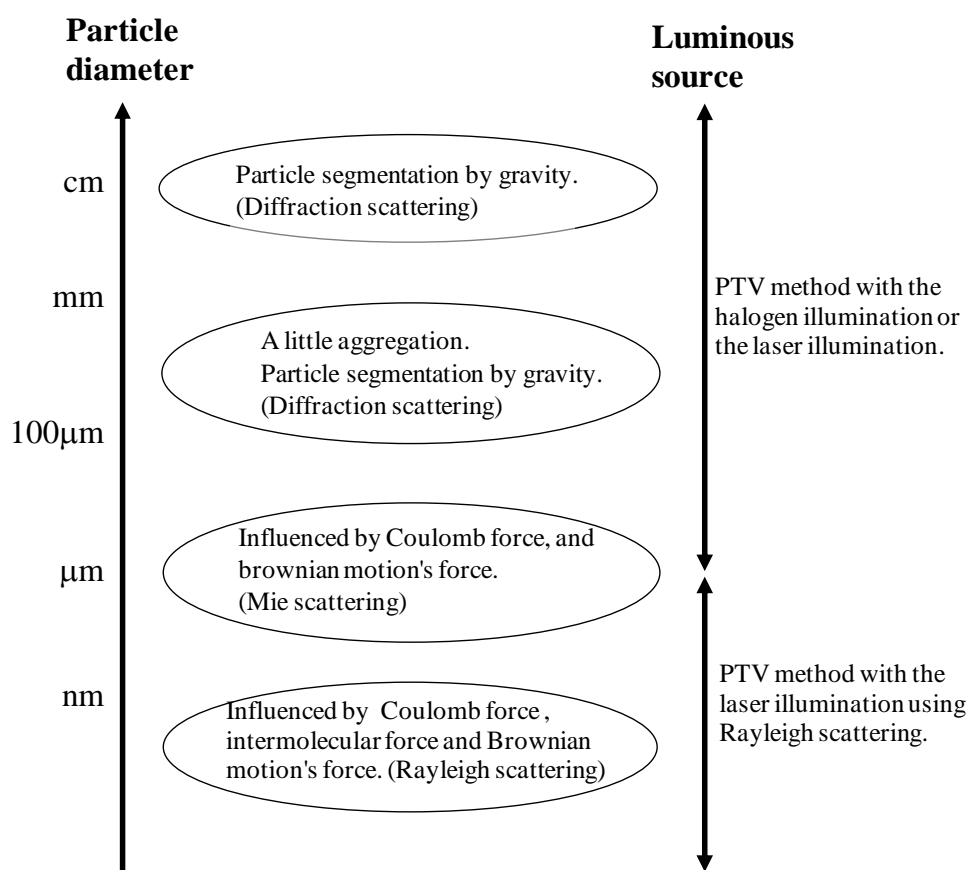


図 2-1 粒子間相互作用と粒子径の相関、及び可視化の適用範囲。 $\mu\text{m}$  以下の粒子径では、磁気力に比べて相対的に粒子間力やブラウン運動等の影響が大きくなる。また、回折散乱でなくレイリ散乱を利用した観察方法が適する。



## 2.2 ナノ～マイクロオーダー粒子挙動の可視化装置と実験方法

磁界発生装置と光学機器との空間的な干渉や、磁界発生装置からの漏えい磁界による光学電子機器に対する干渉を回避可能な可視化装置の構成について検討し、ナノ～マイクロオーダーの微粒子挙動の観察を実施した。

はじめに、磁界発生装置のない構成でナノ～マイクロオーダー粒子の可視化自体が可能であるかについて実験を行う。

観察に用いた粒子は、平均粒径  $5\ \mu\text{m}$  の  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  (マグネタイト) 粒子と粒径約  $30\ \text{nm}$  の金粒子の 2 種類である。これらの粒子をそれぞれ純水中に分散させて円筒形の石英ガラス製水槽 (直径  $50\ \text{mm}$ 、長さ  $50\ \text{mm}$ ) に封入した。図 2-2 に白色光源を用いた可視化装置とレーザー光源を用いた光学装置の概略図を、図 2-3 には可視化装置の試験時配置状態をそれぞれ示す。

白色光源 (a) の場合は、微粒子の入った水槽の背面からハロゲンランプ ( $100\ \text{W}$ ) を照射し、正面からマイクロスコープを介して高速度カメラで粒子画像を取得する。レーザー光源 (b) の場合は、微粒子の入った水槽の側面からグリーンレーザー (SHG of Nd: YAG laser,  $20\ \text{mW}$ ,  $532\ \text{nm}$ , CW) を照射し、正面からマイクロスコープを介して高速度カメラで粒子の散乱光を粒子画像として取得する。画像集録装置のフレーム速度は  $30 - 2500\ \text{fps}$  で、マイクロスコープの倍率は  $5 - 1000$  倍である。マグネタイトはその粒子径から放置すると自然沈降するため、あらかじめ水槽をふって中の粒子を十分に攪拌したのち観察を行った。取得した画像はオフラインで画像処理ソフトによって粒子軌道解析を行い、粒子の変位、速度と加速度を算出した。

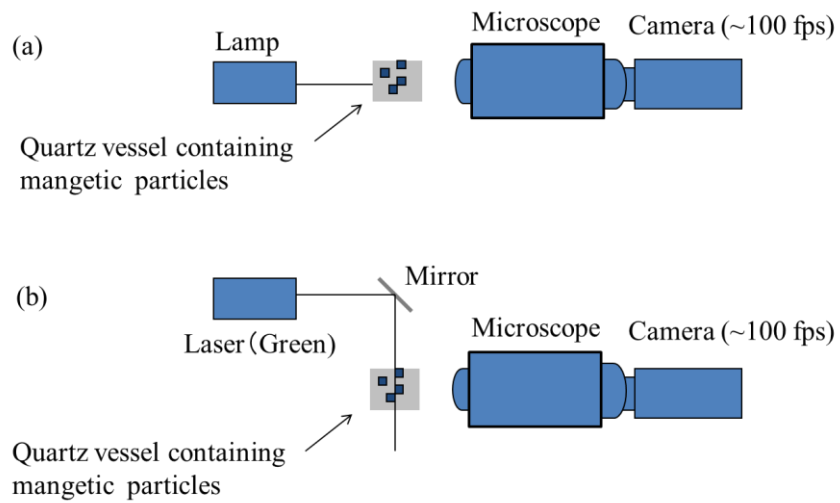


図 2-2 白色光源及びレーザ光源を用いた光学装置概略図。図 2-1 に示したように粒子径によって二種類の方法を使い分ける。

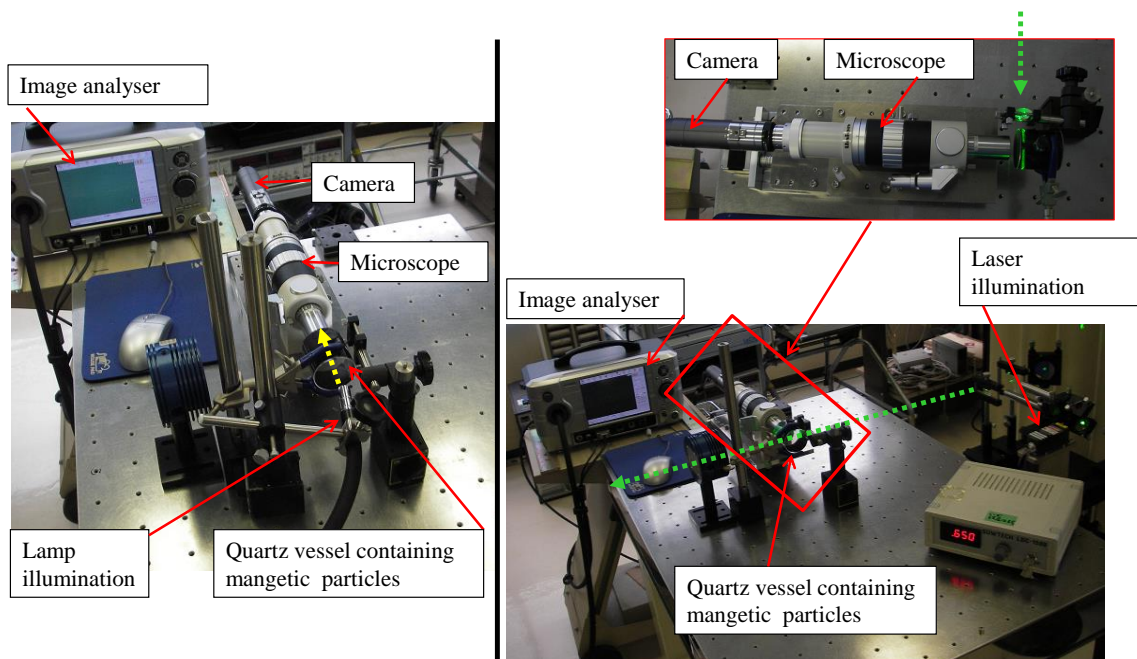


図 2-3 白色光源及びレーザ光源を用いた可視化装置。左図は、白色光源下でのマイクロスコープによる磁性微粒子可視化装置で、右図は、レーザ光源下での磁性微粒子可視化装置。図中の(a)と(b)の構成は、図 2-2 に示した光学装置概略図に示した白色光源(a)とレーザ光源(b)の配置に対応している。

次に、前述した磁界発生装置が無い構成で可視化できることが確認されたのち、時間変動磁界下における磁性微粒子挙動を可視化する実験は以下のように行う。

二極電磁石に 2.2 節で示した可視化装置を組み込み、鉛直上方への外部磁界と同期させた磁性微粒子の挙動を可視化し、同一視野内にて継続的に観察するために必要な磁気力の大きさや励磁波形の検討と、外部磁界に対する磁性微粒子の応答性の評価を行った。

時間変動磁界下における磁界応答試験に用いた磁性微粒子の特性データを図 2-4 に示す。平均粒径 100  $\mu\text{m}$  のフェライト系粒子 KNI-109GS（粒径分布: 約 20  $\mu\text{m}$  – 300  $\mu\text{m}$ ）と、平均粒径 12  $\mu\text{m}$ （粒径分布: 約 300 nm – 300  $\mu\text{m}$ ）のフェライト系粒子 LD-M の 2 種類を使用した。また、それぞれの磁性微粒子の磁気特性（試料振動式磁力計 VSM にて計測）を図 2-5 に示す。フェライト系粒子 LD-M の磁化率は 2.3 (50 mT 時)、飽和磁化は  $1.8 \times 10^5$  A/m であった。フェライト系粒子 KNI-109GS の磁化率は 1.9 (50 mT 時)、飽和磁化は  $1.4 \times 10^4$  A/m であった。

Brand name	LD-M	KNI-109	KNI-109GS
Ferrite material	Mn-Zn	Ni-Zn	Ni-Zn
Average particle size $\mu\text{m}$	12	0.75	100
Bulk density $\text{g/cm}^3$	1.7-2.0	0.9-1.0	2.3-2.4
Saturation Magnetization $\text{emu/g}$	84	52	50
Coercive force $\text{Oe}$	11	19	26
Curie temperature $^{\circ}\text{C}$	> 215	> 110	> 110
Electrical resistivity $\Omega\text{m}$	6 (min)	$10^5$ (min)	$10^5$ (min)

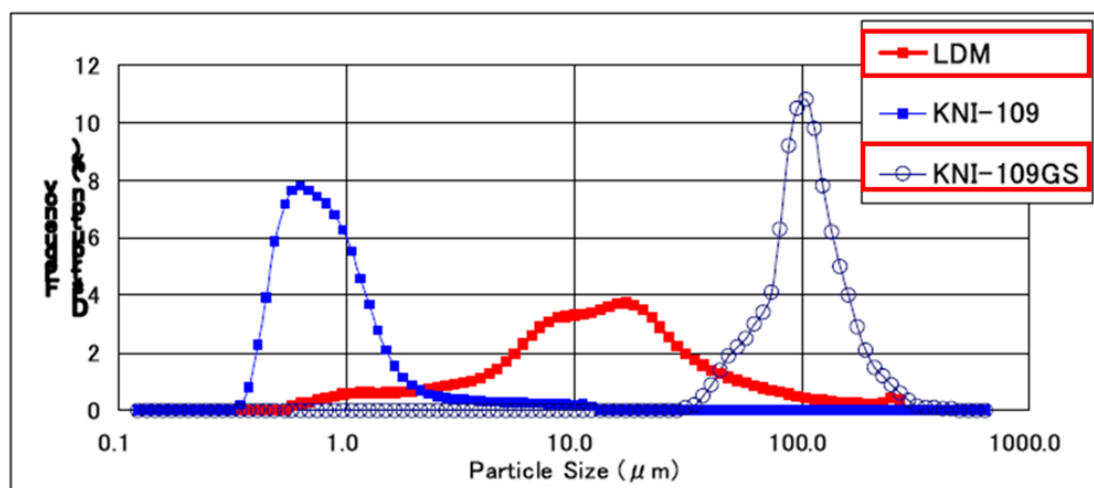


図 2-4 磁性微粒子の特徴(本研究では、LD-M と KNI-109GS を使用)。JFE ケミカル社製のフェライト微粒子

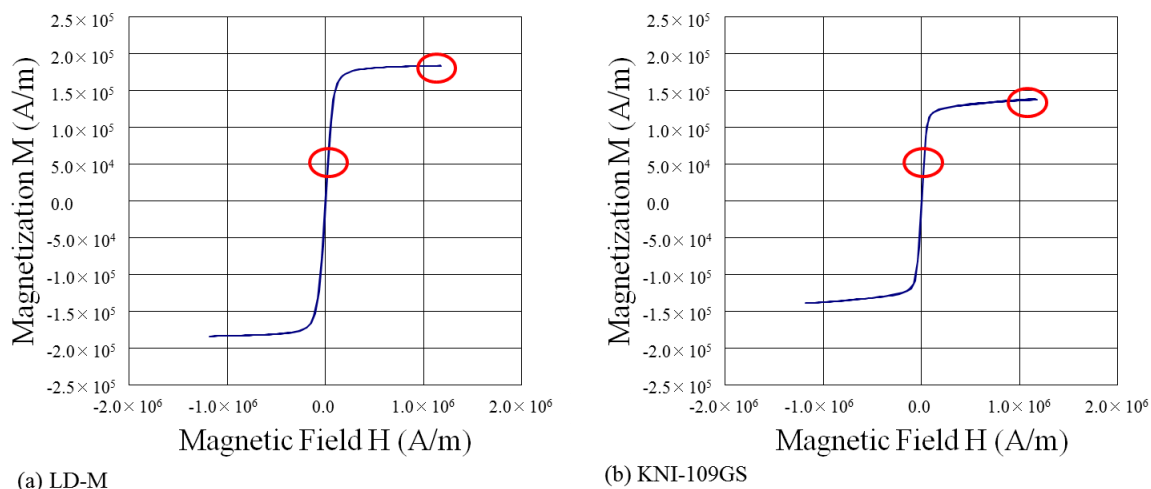


図 2-5 磁性微粒子の磁気特性(VSMによる計測値)。LD-M は平均粒子径が  $12\ \mu\text{m}$ 、KNI-109S は平均粒子径が  $100\ \mu\text{m}$ 。LD-M の磁化率は 2.3(50 mT 時)、飽和磁化は  $1.8 \times 10^5\ \text{A/m}$ 、KNI-109GS の磁化率は 1.9(50 mT 時)、飽和磁化は  $1.4 \times 10^4\ \text{A/m}$  であった(図中、赤丸)。

図 2-6 に鉛直方向に時間変動磁界を発生可能な二極電磁石を有する磁性微粒子挙動の可視化装置を示す。二極電磁石は、ウィンドウフレーム型の SS400 製鉄心を備え、上下の磁極間ギャップは 300 mm、磁極面形状は  $100\ \text{mm} \times 100\ \text{mm}$  の矩形形状である。コイル巻数は 500 巻/磁極で、最大電流が 24 A である交流安定化電源にて上側コイルのみに通電する。また、磁極間ギャップ内には磁性微粒子含有の石英ガラス水槽が設置されている。これにより、純水中に分散させた磁性微粒子には鉛直上向きの磁気力が作用する。電磁石への出力電圧をテキストデータで保存し、また、高速カメラからの画像は画像処理装置に動画として保存し、動画解析ソフトによって粒子の変位や速度、加速度を算出し指令信号に対する応答特性を取得した。なお、電磁石への励磁電圧と観察画像はトリガー信号で同期させて記録した。図 2-7 にはレーザ光源による可視化装置の光学機器構成図を示す。二極電磁石外側に設置したレーザ源からレーザを照射し、ミラーによって二極電磁石ギャップ内にある石英ガラス製水槽に誘導した。

同一視野内にて継続的に特定の磁性微粒子を観察するための励磁条件を決定する際のパラメータ範囲は、コイル電流 ( $-16.8 - 16.8\ \text{A}$ )、周波数 ( $0.2 - 2\ \text{Hz}$ )、励磁波形(正弦波、矩形波、三角波、ノコギリ波)とした。なお、周囲流体から受ける力による変位と、時間的変動磁界に応答した変位とを区別しやすくするために、フェライト系磁性微粒子の 2 種類以外に、磁気力に応答しない常磁性体である  $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$  (平均粒径  $5\ \mu\text{m}$ ) も石英ガラス製水槽

と一緒に封入した。また、後ほど磁気力を算出するために、試験を開始する前に二極電磁石の磁極間の磁界測定を行い、磁束密度分布と磁気勾配分布を求めた。

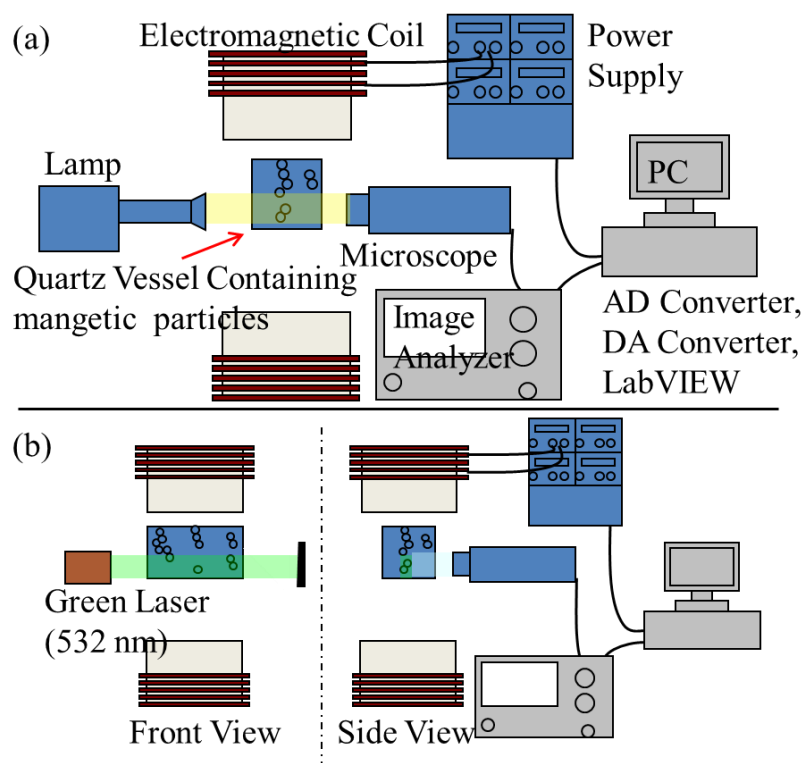


図 2-6 時間変動磁界下における磁性微粒子挙動の可視化装置

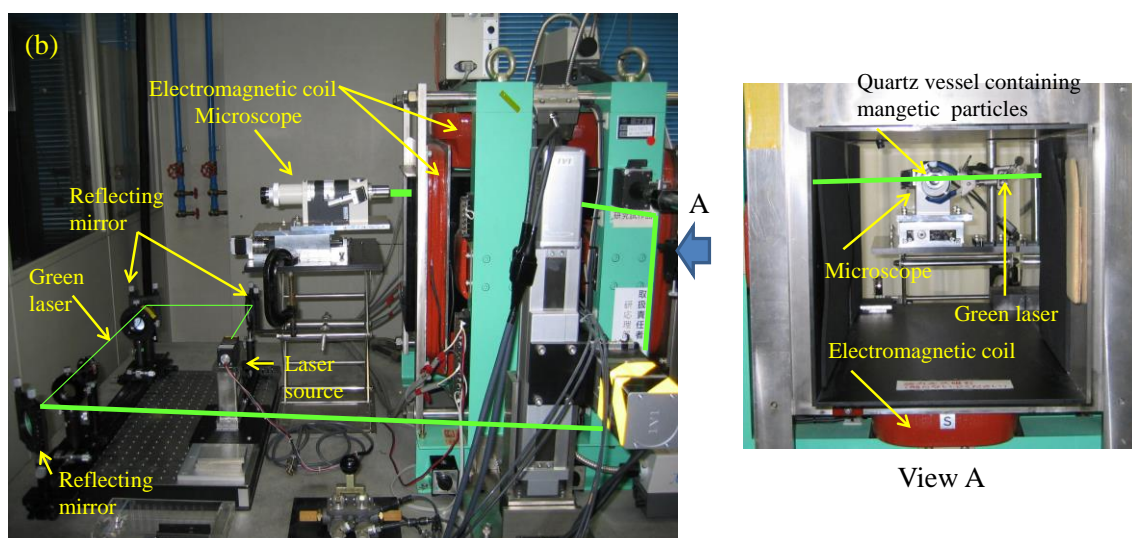


図 2-7 二極電磁石周辺のレーザ光学機器の構成図。上図は、図 2-6(b)の構成。

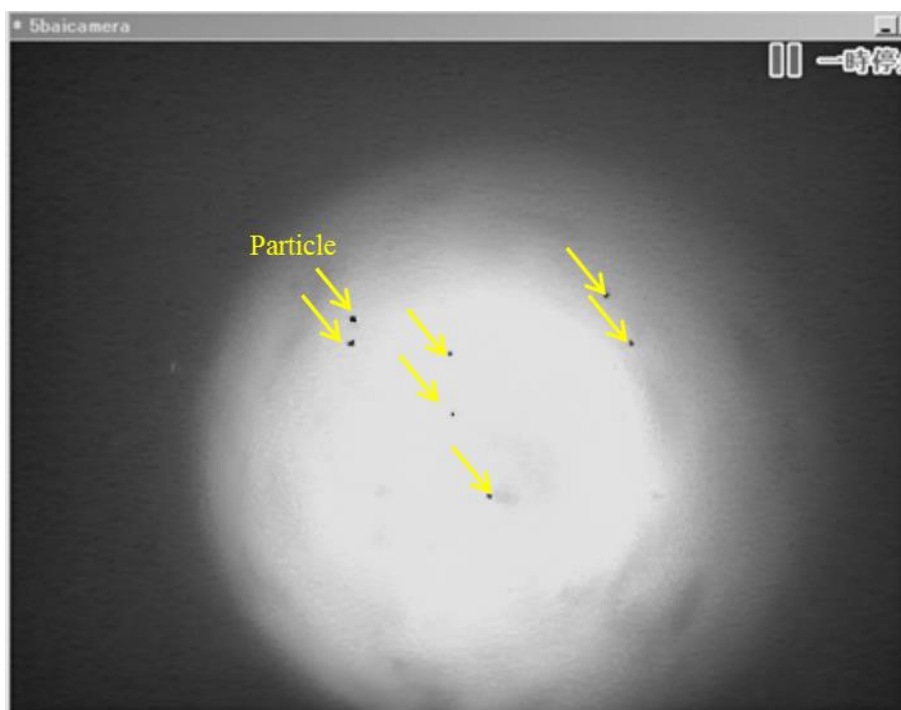
## 2.3 ナノ～マイクロオーダー粒子挙動の可視化実験結果

### 2.3.1 ナノ～マイクロオーダー粒子挙動の可視化

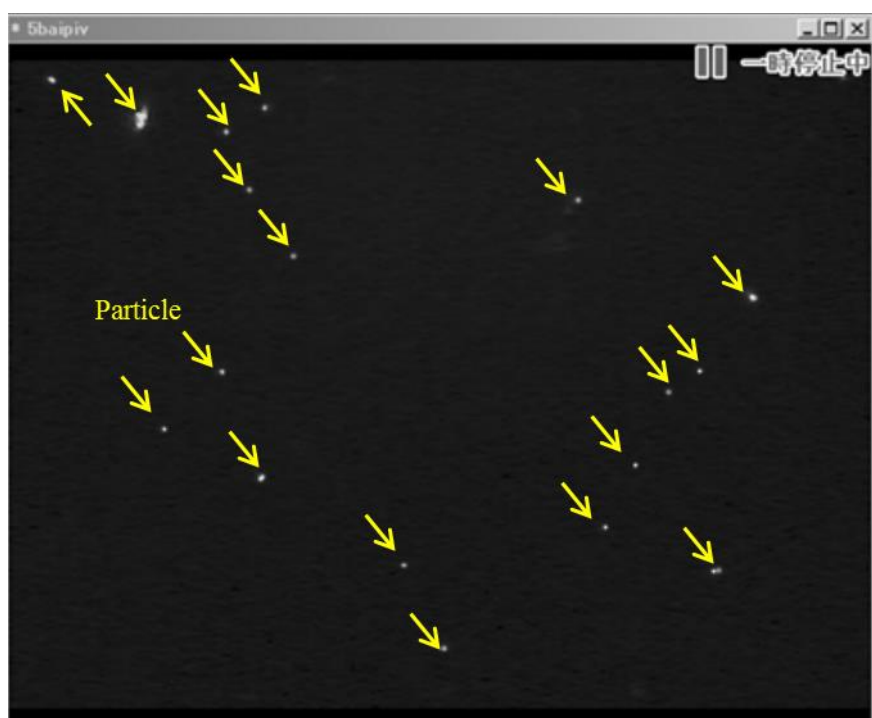
図 2-8～2-9 には、石英製水槽中の  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  粒子（平均粒子径  $2\ \mu\text{m}$ ）を対象として、白色光源とレーザ光源のそれぞれの可視化手法で取得した画像（倍率：図 2-8 は 250 倍、図 2-9 は 1000 倍）の一例を示した。粒子径が光源の波長以上であり、回折散乱する領域であるため、ハロゲンランプ照射とレーザ照射のいずれの場合においても粒子画像の取得と画像処理装置による粒子軌道解析を行うことができた。ただし、ハロゲンランプ照射の場合は粒子形状がはっきり観察できるのに対して、レーザ照射の場合はレーザの粒子に対する当たり方によって粒子形状の見え方が変化した。一方、粒子軌道解析に関しては、レーザ照射では観察画像が黒色の背景であるためトラッキングする目的においては二値化しやすくメリットとなることを確認できた。

次に、粒径約  $30\ \text{nm}$  の金ナノ微粒子を対象としてハロゲンランプ照射とレーザ照射による可視化手法を適用した。図 2-10～2-11 に、石英製水槽中の金ナノ微粒子の画像（倍率：図 2-10 は 250 倍、図 2-11 は 1000 倍）の一例をそれぞれ示した。ハロゲンランプ照射の場合は波長よりも粒子径のほうが小さくレイリ散乱領域のため、マイクログラフの倍率を 1000 倍まであげても粒子を観察することはできなかった（図 2-10 では約  $1\ \mu\text{m}$  のクラスタ粒子のみ、図 2-11 では約  $5\ \mu\text{m}$  のクラスタ粒子のみ観察された）。

一方、レーザ照射の場合はレイリ散乱による散乱光が倍率 250 – 1000 倍において多数観察され、今回選定したレーザを光源とした可視化方法でナノオーダーの微粒子の挙動を取得することが可能であることが確認できた。



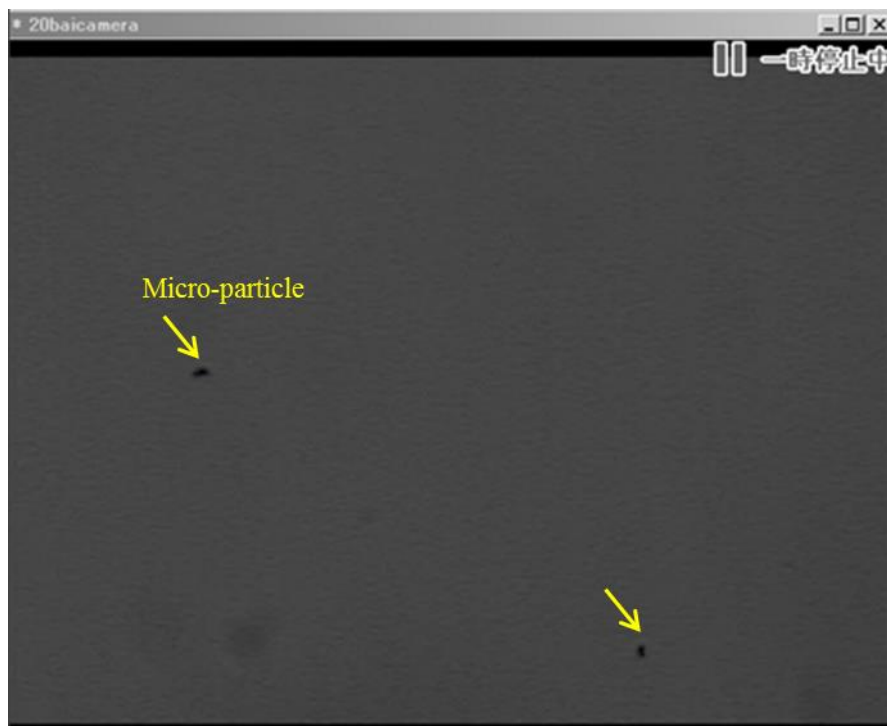
(a) Particle image with the lamp illumination



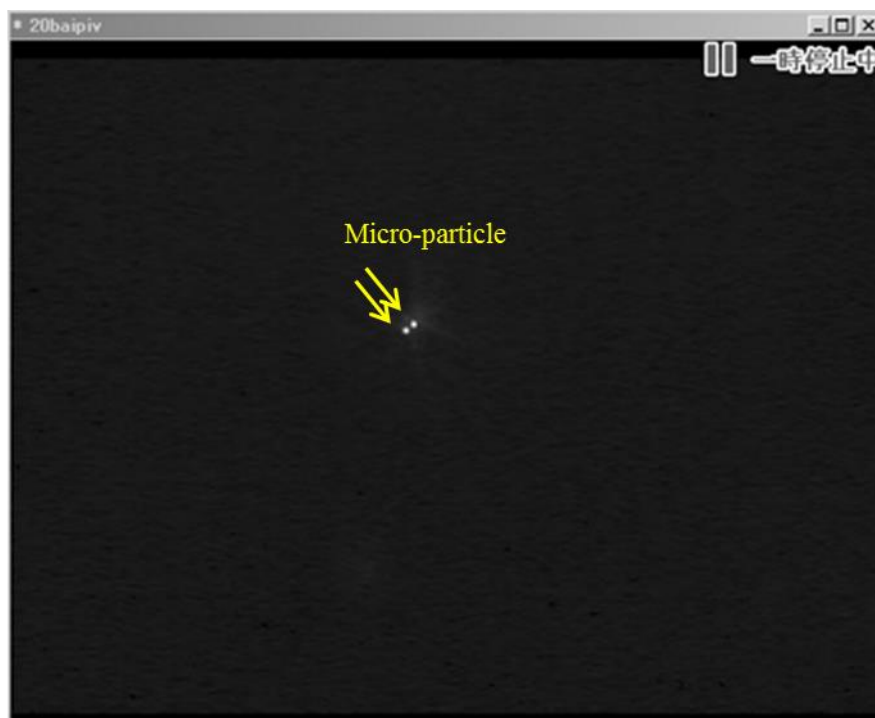
(b) Particle image with the laser illumination

図 2-8 石英製水槽中のマグネタイト( $\text{Fe}_3\text{O}_4$ )の可視化試験結果(250 倍)。平均粒子径が  $5\ \mu\text{m}$  のため、(a) 白色光源でも(b)レーザ光源でも回折散乱で観察可能。(b)は強度が強く広範囲の光源のため、粒子が多数観察されている。





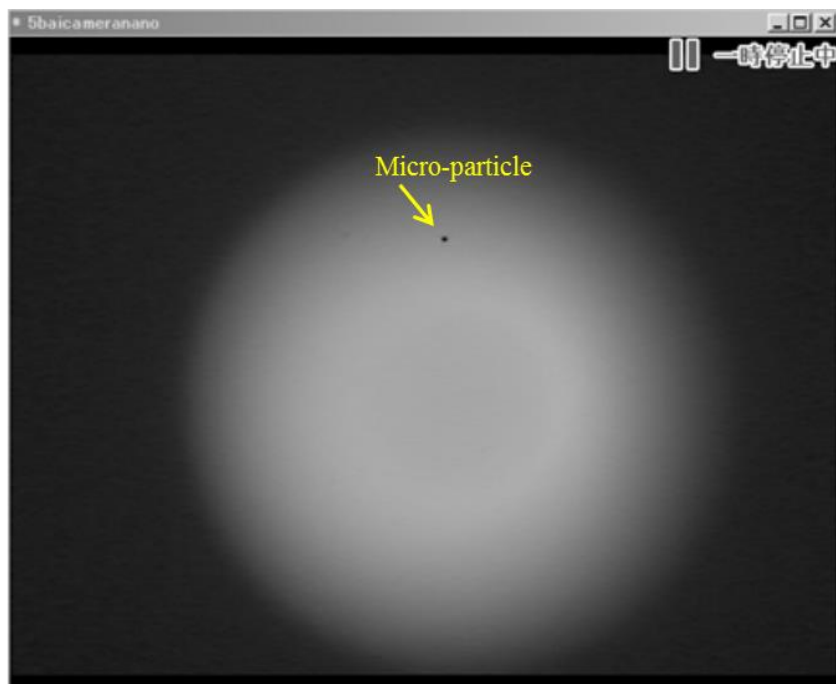
(a) Particle image with the lamp illumination



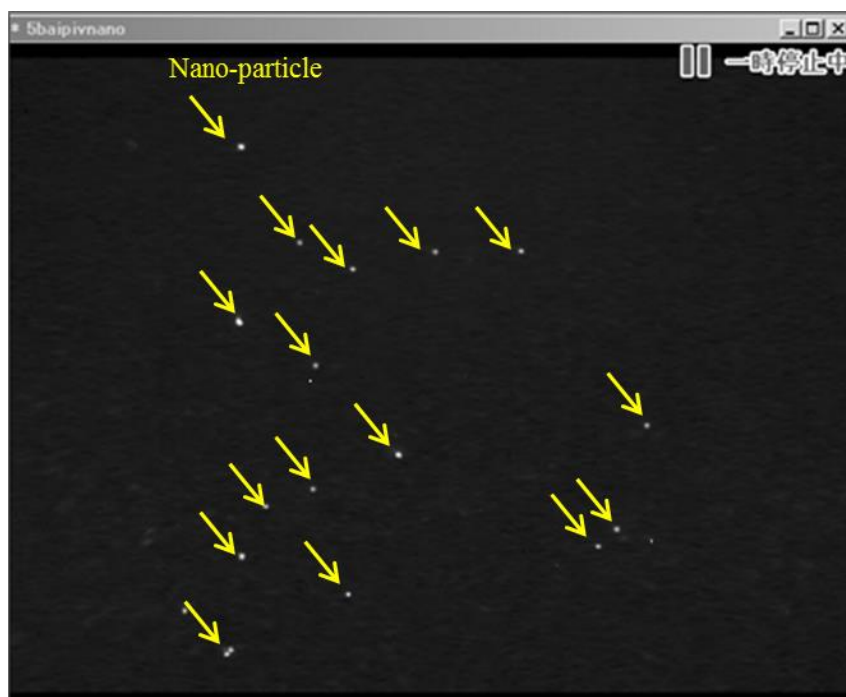
(b) Particle image with the laser illumination

図 2-9 石英製水槽中のマグネタイト( $\text{Fe}_3\text{O}_4$ )の可視化試験結果(1000 倍)。図 2-8 の 4 倍の倍率のため、粒子形状がはっきりと確認できる。



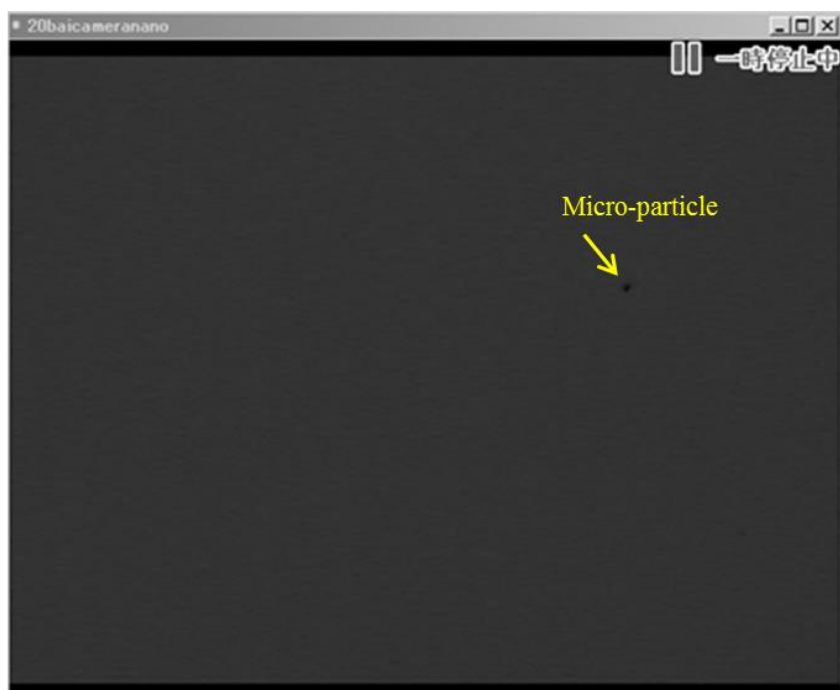


(a) Particle image with the lamp illumination



(b) Particle image with the laser illumination

図 2-10 石英製水槽中の金ナノ微粒子の可視化試験結果(250 倍)。(a) 平均粒子径が 30nm のため、白色光源による回折散乱では観察不可能。矢印は、 $\mu\text{m}$  オーダーの塊であり、粒子のいる領域に焦点はあっている。(b) (a)と同じ視野に対してレーザ光源の場合、明らかに多数の金ナノ粒子の散乱光が観察される。



(a) Particle image with the lamp illumination



(b) Particle image with the laser illumination

図 2-11 石英製水槽中の金ナノ微粒子の可視化試験結果(1000 倍)。(a)平均粒子径が 30 nm のため、倍率を上げただけでは観察不可能。矢印は  $\mu\text{m}$  オーダーの塊であり、焦点確認用。(b) (a)と同じ視野だが明らかに多数の金ナノ粒子の散乱光が観察できている。

## 2.3.2 時間変動する磁界下におけるマイクロオーダー磁性粒子挙動の可視化

コイル電流振幅を0–16.8 Aまで変化させた場合の二極電磁石ギャップ中心軸上における磁束密度分布を図 2-12 に示す。磁性微粒子が含有されている石英ガラス製水槽の中心（つまり視野中心）は上側磁極面から約 50 mm 地点であるので、観測地点における磁束密度は最大電流を印加した 16.8 A の場合で 42 mT、磁気勾配は 0.55 T/m であった。

図 2-13 に、無磁界下における白色光源とレーザ光源を用いた場合の粒子画像を示した。なお、観測直前に水槽内の粒子を分散させるために水槽を攪拌してあるため、このケースでは水槽内は鉛直下方から上方に向かって対流が生じていた。ここで、レーザ光源の場合の粒子画像 (b) は白色光源の場合の粒子画像 (a) を撮影した約 2 s 後に撮影したものである。粒子位置はいずれの画像においても確認できた。一方、前述したようにレーザ光源の場合では散乱光を観察しているために、白色光源の場合に見えていた粒子形状とやや異なった形状に見える。

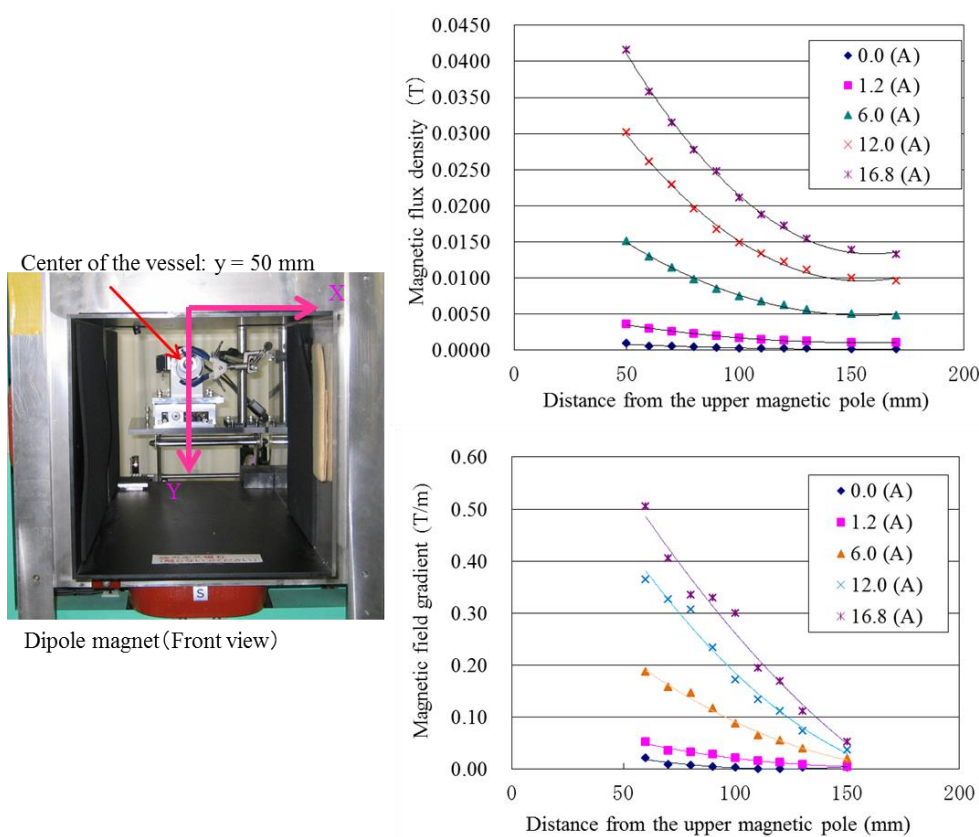


図 2-12 二極電磁石ギャップ中心軸上の磁束密度と磁気勾配分布。コイルへ流す電流を、0–16.8 A の範囲で変化。

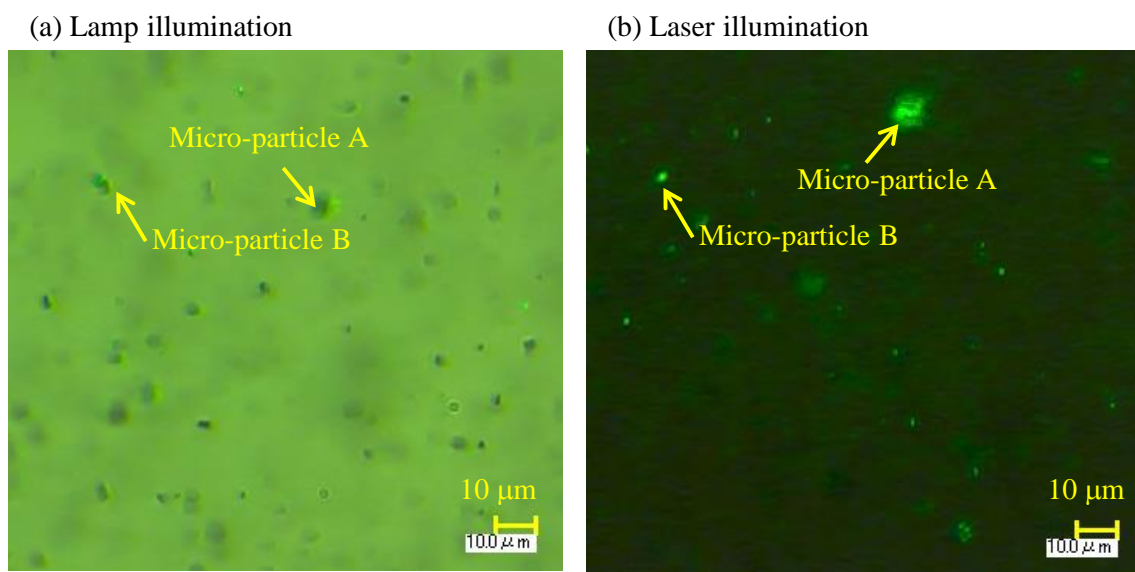


図 2-13 白色光源とレーザ光源を用いた場合の粒子画像の比較（無磁界下）。(b)は(a)を撮影した2 s後の同一視野画像。(a)では粒子形状が確認できるが、(b)は散乱光の状態により位置は確認できるが形状は不明瞭。

図 2-14 には矩形波状の磁界を作用させた場合における、隣接する磁性微粒子 LD-M と常磁性体 $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ の粒子画像の一例、及びそれぞれの粒子の垂直方向変位の時間変化を示した。常磁性体であるか強磁性体であるかは磁界変化に応じて速度変化が見られるか否かで判別し、磁性微粒子の変位の時間変化と常磁性粒子の変位の時間変化との差をとることで、時間的変動磁界に対する磁性微粒子の応答性を確認した。観察対象とした粒子径が数 $\mu\text{m}$ 以上であったため、上向きの磁気力や流体抵抗力が作用しないと重力によって沈降する。励磁条件のうち、三角波や正弦波は、磁気力としては常に鉛直上向きに作用するものの、振幅が反転する 0 A 付近において磁気力が弱く重力が支配的になる時間が多くなり粒子が沈降し観察視野に留まらせることが困難であったり、励磁したことで他の場所で巨大クラスター化した磁性微粒子が必要以上に動き水槽内の流れを乱したりするため、同一視野内において同一粒子の磁界応答性を継続的に確認する電流波形としては向いていないことがわかった。一方、矩形波とノコギリ波は、励磁する最小磁界と最大磁界を調整することで、同一視野内にて同一粒子の継続的な磁界応答性を容易に確認できることがわかった。重力とのバランスを常時取りやすいことから、以降では矩形波にて励磁することとした。

図 2-15 には、レーザ光による可視化手法を用いた場合の磁性微粒子に作用させた磁束密度（磁気勾配）と磁性微粒子の垂直方向変位との関係を示す。なお、白色光による可視化手法を用いた場合の結果である図 2-14 で述べたように、図中の垂直方向変位は常磁性粒子

に対する相対変位である。図 2-14 と図 2-15 はいずれも 1 Hz の矩形波で励磁した場合の微粒子の軌道解析結果であり、サンプリング周期である 10 ms においては作用した磁界（磁気力）に応答すること、さらに可視化手法によらず鉛直上向きに緩急をつけて上昇する挙動を定量的に示すことができた。図 2-16 には、磁束密度（磁気勾配）と磁性微粒子速度との関係、表 2-1 には粒子速度計測を行った際の平均粒子径を示した。ここで、磁性微粒子は LD-M を使い、一例として 1 Hz の矩形波で非接触磁気駆動させたときの最大粒子速度と軌道解析によって算出した粒子径とをそれぞれ図表に示した。飽和磁界には至っていないため、磁束密度（磁気勾配）の増加に対して粒子速度は二乗で増加する傾向が確認できた。図 2-14～2-16 の結果より、外部変動磁界に対する磁性微粒子の応答速度や、重力に逆らって牽引するのに必要な磁界や磁気勾配の大きさを把握することができた。これらの知見を用い、図 2-17 では、粒径約 10  $\mu\text{m}$  の磁性微粒子 LD-M を使って、上下運動をさせながら観察視野内に留める非接触磁気駆動を試みた。図 2-14～2-15 に示した要領で周波数や磁束密度の大きさをパラメータに磁性微粒子挙動を調べた結果、周波数 2 Hz で、磁束密度の振れ幅を 7–23 mT とし、磁性微粒子に鉛直上向きに磁気力を矩形波状に作用させると観察視野内において継続的に上下運動させることができることがわかった。

ここで、図 2-14 や図 2-15 に示したような、磁気力で磁性微粒子を鉛直上方に緩急駆動させる場合の主な作用力について考察する。粒子形状は簡単のため球形を仮定する（減磁率は 1/3、磁化率は 2.3）。磁性体に作用する磁気力は磁化と磁気勾配に比例し、

$$\mathbf{F}_p = V_p \times \mu_0 \mathbf{M}_0 \times \text{grad}(\mathbf{H}_0) \quad (2-2)$$

ここで、 $V_p$  は磁性微粒子の体積、 $\mu_0$  は真空透磁率、 $\mathbf{M}_0$  は磁化、 $\mathbf{H}_0$  は外部磁界を表す。また、磁性粒子内の磁界  $\mathbf{H}_{0in}$  は磁化率を  $\chi$ 、減磁率を  $N$  とすると、

$$\mathbf{H}_{0in} = 1 / (1 + \chi N) \times \mathbf{H}_0 \quad (2-3)$$

$$\mathbf{M}_0 = \chi \mathbf{H}_{0in} \quad (2-4)$$

球形の粒子が流体から受ける流体抵抗力は、ニュートン流体とすると、

$$\mathbf{F}_d = 6\pi \times \eta \times r_p \times (\mathbf{v}_f - \mathbf{v}_p) \quad (2-5)$$

ここで、 $\eta$  は流体の粘性係数、 $r_p$  は磁性微粒子の半径、 $\mathbf{v}_f$  と  $\mathbf{v}_p$  はそれぞれ流体と粒子の速度を表す。重力と浮力はそれぞれ

$$F_g = \rho_p \times (4/3)\pi \times r_p^3 \times g \quad (2-6)$$

$$F_b = \rho_f \times (4/3)\pi \times r_p^3 \times g \quad (2-7)$$

ここで、 $\rho_p$  と  $\rho_f$  は粒子と流体との密度を表す。これらの理論式を使って磁性微粒子が垂直上向きに磁気力で駆動する際の力関係と、鉛直下向きに落下する際の力関係を計算すると、磁性微粒子が 45 mT、0.61 T/m において、 $F_p = 14.9$  pN、 $F_d = 7.3$  pN、 $F_g = 10.3$  pN、 $F_b = 5.1$  pN となる。ゆえに、 $F_p + F_b > F_d + F_g$  となり加速力を生じる。一方、磁性微粒子が 33 mT、0.45 T/m において、 $F_p = 8.1$  pN、 $F_d = 4.5$  pN、 $F_g = 10.3$  pN、 $F_b = 5.1$  pN となる。ゆえに、 $F_p + F_b < F_d + F_g$  となり減速力を生じる。

ここで、図 2-14 で用いた動画から、45 mT の場合の磁性微粒子速度を 77  $\mu\text{m/s}$ 、33 mT の場合の磁性微粒子速度を 48  $\mu\text{m/s}$  とした。以上から、図 2-14 で示した粒子挙動と傾向が一致したことから、これらの近似式によって磁性微粒子に作用する主な力のバランスを簡易評価できることが確認できた。

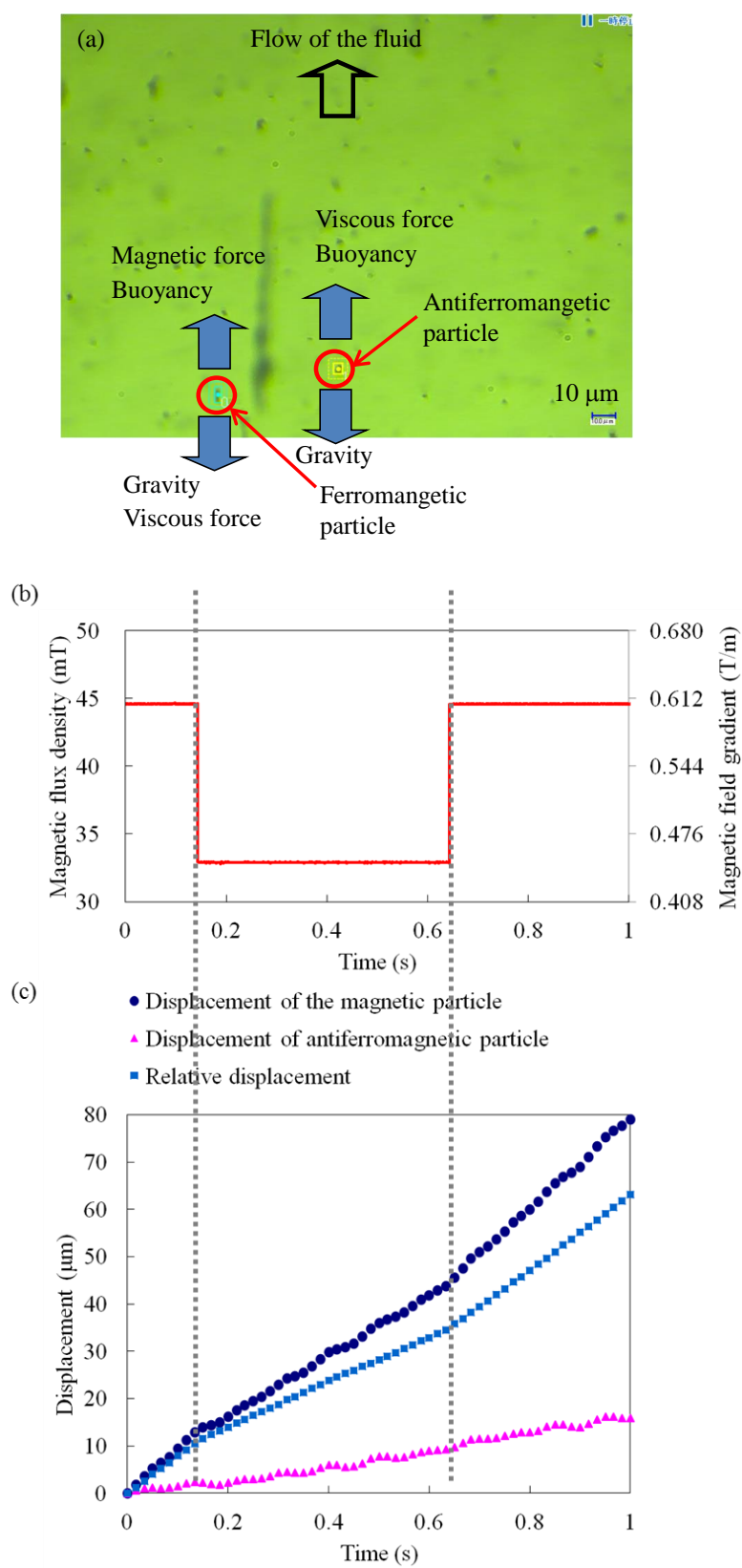


図 2-14 磁性微粒子の磁界応答性評価方法(白色光源)。(a)の粒子画像から画像処理によって(c)の相対垂直方向変位を算出する。(b)から周波数は 1 Hz。

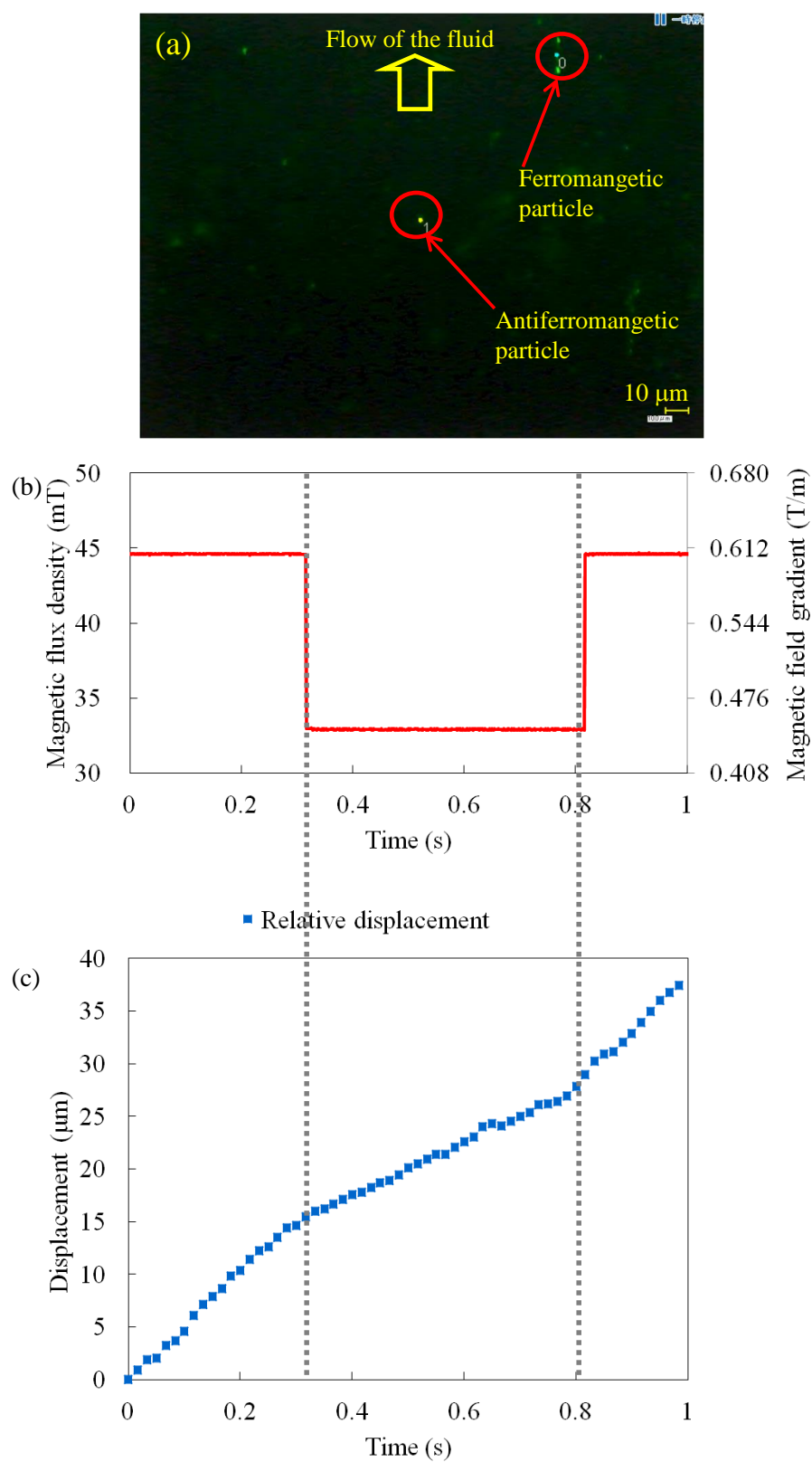


図 2-15 磁性微粒子の磁界応答性評価方法(レーザ光源)。(a)の粒子画像から画像処理によって(c)の相対垂直方向変位を算出する。(b)から周波数は 1 Hz。



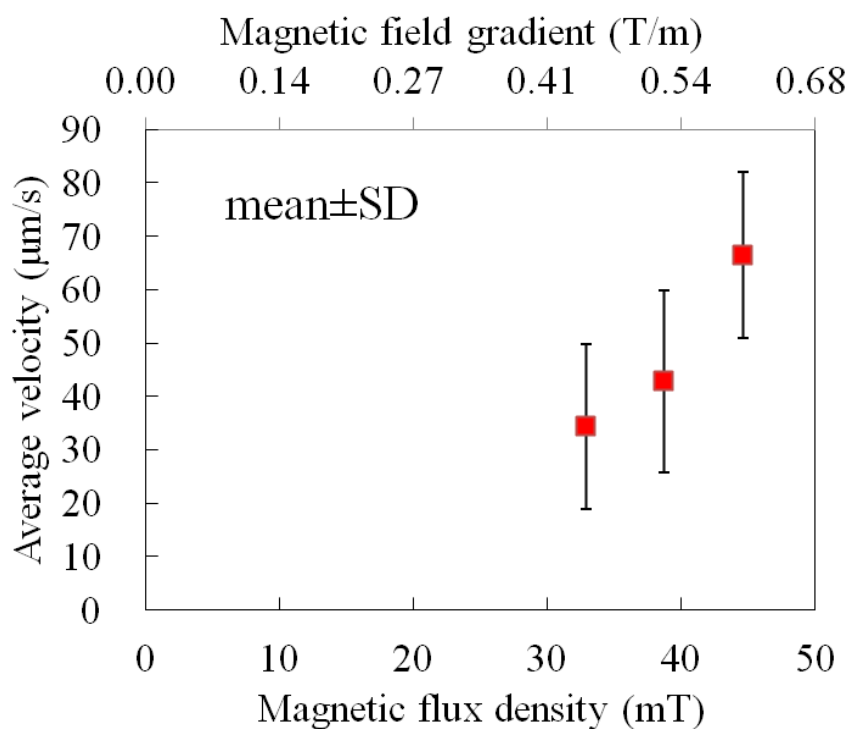


図 2-16 二極電磁石で発生させる磁束密度(磁気勾配)に対する磁性微粒子の非接触磁気駆動時の速度。式 2-2 から明らかなように、非接触磁気駆動時の粒子速度は、磁束密度あるいは磁気勾配の二乗に比例した関係を示す。

表 2-1 粒子速度計測(図 2-16)に用いた粒子の直径、及びその時の磁束密度と磁気勾配。用いた粒子径は約 5 μm。それぞれ 3 回の実験による平均と標準偏差。

Magnetic flux density (mT)	Magnetic field gradient (T/m)	Diameter of particle (μm)	
		Mean	SD
44.6	0.61	4.6	1.1
38.7	0.53	5.2	0.8
32.9	0.45	3.9	0.5

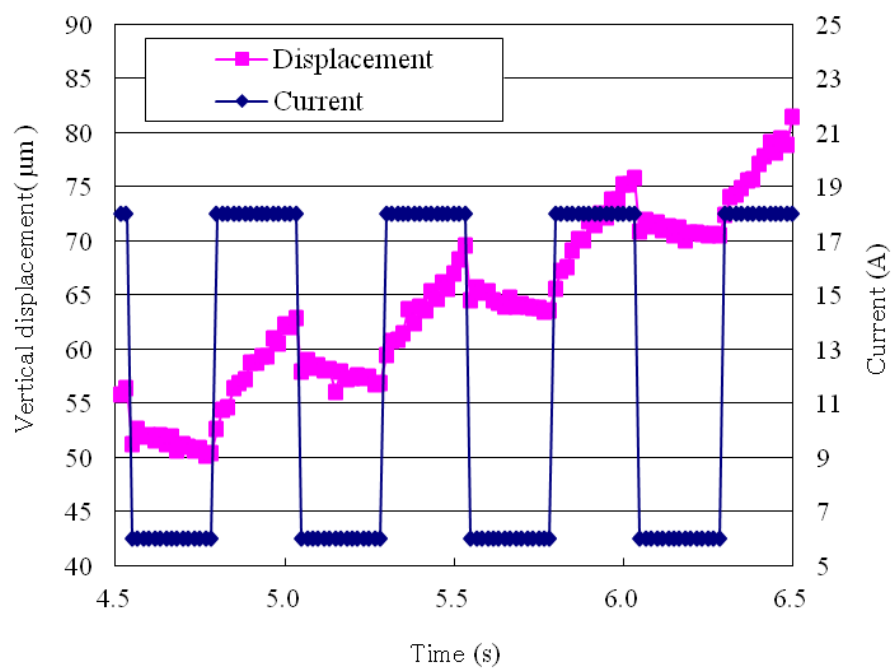
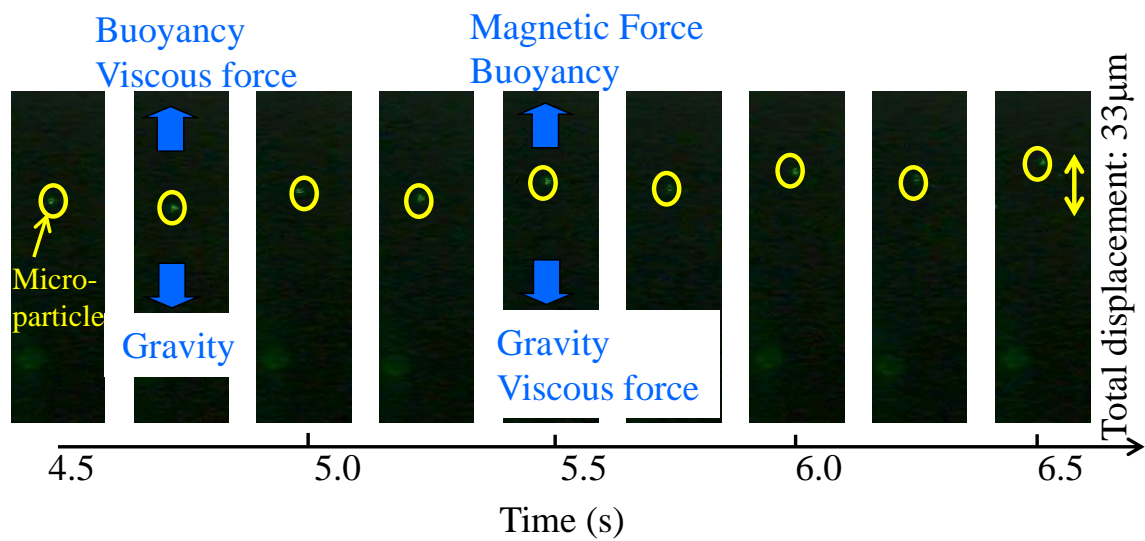


図 2-17 同一視野内における同一磁性微粒子による緩急駆動の連続画像(上)、及びコイル電流の時間変化と連続画像から算出した垂直方向変位(下)。励磁周波数は 2 Hz。粒子の駆動方向により流体抵抗力の作用方向が変化。視野は約 1000  $\mu\text{m}$  あるため、同一視野内に留めて、継続的な粒子挙動観察が可能。

## 2.4 本章のまとめ

第 2 章では、外部磁界作用下で狭隘な空間におけるナノ～マイクロオーダーの磁性微粒子挙動をリアルタイムに可視化する光学システムを構築するために、磁界発生装置と光学機器との設置上の空間的な干渉や、磁界発生装置からの漏えい磁界による光学電子機器に対する干渉を回避することが課題であった。また、変動磁界下における磁性微粒子の挙動を定量的に計測するために、同一磁性微粒子を継続的に同一視野内にとどめておく必要があり、外部磁界に対する応答性を把握することが必要であった。以上の課題に取り組んだ結果、次のことが明らかとなった。

- 1) 本章で構築したハロゲンランプを光源とした可視化手法は、1  $\mu\text{m}$  以上の粒子に対しては形状観察と粒子軌道解析が可能である。また、グリーンレーザを光源とした可視化手法では、マイクロオーダーばかりでなく、ナノオーダーの微粒子に対しても粒子軌道解析が可能であることが明らかとなった。さらに、簡易な構成であるため、可視化性能を維持しつつ空間的、電磁的な干渉を回避して常伝導電磁石へ組み込むことが容易であることが確認できた。
- 2) 時間的変動磁界と磁性微粒子の挙動を同期して取得可能な可視化システムを構築できたことで、マイクロオーダーの磁性微粒子の磁界応答時間や、流体抵抗や重力といった磁性微粒子への作用力に対抗可能な磁気力を発生する励磁条件が定量的に示された。

以上、白色光源による方法では 1  $\mu\text{m}$  以上、レーザ光源による方法では最小で 30 nm の粒子挙動の可視化を実証した。また、白色光源を用いた方法では、時間変動する磁界下においても可視化可能であることも実証した。これより、第 3 章以降における磁性微粒子の非接触磁気把持、作用力評価や非接触磁気操作に必要な可視化手法に関する基礎的な知見を得ることができた。

## 参考文献

- 1) J. G. Santiago, S. T. Wereley, C. D. Meinhart, D. J. Beebe, and R. J. Adrian: “A particle image velocimetry system for microfluidics.”, Exp. Fluids, Vol. 25, No. 4, pp. 316 – 319 (1998)
- 2) C. D. Meinhart, S. T. Wereley, and J. G. Santiago: “PIV measurements of a microchannel

flow.”, *Exp. Fluids*, Vol. 27, No. 5, pp. 414 – 419 (1999)

- 3) H. Kikura, J. Matsushita, O. Hirashima, M. Aritomi, and I. Nakatani: “Flow visualization and particle size determination of primary clusters in a water-based magnetic fluid.”, *J. Magn. Magn. Mater.*, Vol. 289, pp. 392 – 395 (2005)
- 4) H. Kikura, J. Matsushita, N. Kakuta, M. Aritomi, and Y. Kobayashi: “Cluster formation of ferromagnetic nano-particles in micro-capillary flow.”, *J. Mat. Proc. Tech.*, Vol. 181, No. 1 – 3, pp. 93 – 98 (2007)
- 5) 松下 潤一郎, 木倉 宏成, 有富 正憲, 小林 勇二: “マイクロキャピラリー流れにおける強磁性ナノ微粒子のクラスター形成”, 日本機械学会関東支部第 11 期総会講演論文集, pp. 123 – 124 (2005)
- 6) 木倉 宏成, 角田 憲隆, 有富 正憲, 小林 勇二: “強磁性ナノ微粒子のマイクロチャンネル内流れ”, 日本 AEM 学会誌, Vol. 14, No. 1, pp. 33 – 38 (2006)

# 第 3 章 磁性微粒子の非接触磁気把持と作用力評価

## 3.1 本章の背景と狙い

流体中のナノ～マイクロオーダー磁性微粒子を対象とした磁気力利用は、ドラッグデリバリー、細胞／DNA 操作、あるいはその他様々な応用先<sup>1)-5)</sup>に適用が期待されている。バイオミメティクス分野における磁性微粒子駆動の一例として、バクテリアの移動メカニズムを模擬し、直流や交流の回転磁界をバクテリアの推進機構に見立てた磁性微粒子群に作用させ、マイクロマシンシステムの駆動に応用した研究<sup>4)</sup>が報告されている。また、静磁界を細胞に作用させることでガラスプレート上において磁性微粒子を含有した細胞の配向を制御するといった研究<sup>6)</sup>も行われている。しかしながら、ナノ～マイクロオーダーの磁性微粒子挙動の実測に基づいて想定通りに非接触磁気駆動する事例はない。

流体中における磁性微粒子挙動は、磁気力のもとより、重力や浮力、流体抵抗といった様々な作用力の影響を受ける。また、磁化した磁性微粒子が作る磁気双極子場<sup>7) - 8)</sup>も周辺磁性微粒子との間に粒子間磁気力が生じるため磁性微粒子挙動に影響を与える。そのため、このような種々の作用力を実測によって定量的に把握することは、将来的にさまざまな応用を想定したナノ～マイクロオーダー磁性微粒子の非接触磁気駆動方法を確立することにおいて非常に重要である。これまで多くの研究者が磁性微粒子に対する作用力について理論的な研究の報告<sup>1), 3), 9) - 13)</sup>を行っている。例えば、ドラッグデリバリー応用を目指し、血管中の強磁性ナノ粒子を対象として、数値解析を行った研究が報告されている<sup>1)</sup>。また、マイクロ流路中におけるナノ磁性粒子の磁気駆動による輸送と磁気捕集の効率を予測するための理論モデルの提案がなされている<sup>3)</sup>。さらには粒子サイズと磁気特性を限定した条件下ではあるが、散逸粒子動力学解析を用いることで希薄溶液中の磁性微粒子の挙動の予測が可能との報告<sup>14)</sup>がなされている。一方、実験による手法では静磁界や周期的な動磁界によって局所的に凝集させて収率を算出するか、磁気泳動やシャーレ上で回転している動きから磁性微粒子に作用する力を予測するなどの考察がなされている<sup>6), 15), 16), 17) - 20)</sup>。しかしながら、磁性微粒子に作用する力をより正確に把握するためには、三次元空間中に浮遊、

流動しているナノ～マイクロオーダーの磁性微粒子の可視化技術や、磁性微粒子自身や磁性微粒子間に作用する微小な力を非接触で計測する技術の構築が望まれる。

過去の研究において、気体や流体中で物体に作用する抵抗力を非接触で計測する方法として、磁力支持天秤による方法が報告されている<sup>21), 22)</sup>。しかしながら、これらは対象物が可視化の容易な数センチメートル～数十センチメートルの大きさで、かつ強力な永久磁石を内蔵した模型を対象とすることが多いため、あらかじめ決まった対象物を接触式で支持しておき、安定した状態から浮上させるといった非接触磁気把持の制御が用いられており、本章で目的としている浮遊、流動している磁性微粒子に作用する力の計測には新たな手法が必要である。

第 2 章において、時間に変動する磁界下でのマイクロオーダーの磁性微粒子の挙動可視化方法について検討し、白色光源やレーザ光源による簡便な可視化方法によって空間的、時間的に変化する外部磁界に同期した磁性微粒子の動き（変位や速度）を市販の画像処理装置を使ってある程度定量的に評価できることを示した<sup>23)</sup>。

本章でははじめに、第 2 章で構築した可視化手法と、個々の磁性微粒子の粒子径や粒子軌道を認識する高速な画像処理技術と、水平／垂直方向に空間的かつ時間的に変動可能な磁界を発生させることができる磁性微粒子の磁気駆動用電磁石を組み合わせ、液体を充填した流体セル中に浮遊、流動している複数の磁性微粒子のうち、指定した一つの磁性微粒子（あるいは微小クラスター）を 3 次元空間中の任意の地点で非接触磁気把持できることを実証する。そして、上述した磁力支持天秤の原理を応用することで、把持した磁性微粒子と周囲の磁性微粒子との相互作用（周辺磁性微粒子が作る磁気双極子場）による吸引力や磁性微粒子に対する磁気力以外の作用力とを、リアルタイムに定量評価可能とする。さらに、第 4 章においてより高度な非接触磁気操作を実証するに先立ち、粒子径、粘度、流速、磁界強度、磁気特性、濃度（粒子間距離）等の値が変化した場合の粒子挙動や粒子に対する流体抵抗力や粒子間磁気力についてより詳細に作用力の評価を行う。

## 3.2 封止された流体セル中における磁性微粒子の非接触磁気把持と作用力評価

### 3.2.1 封止流体セル中における磁性微粒子の非接触磁気把持用磁気駆動装置

#### 3.2.1.1 磁性微粒子の磁気駆動用電磁石

本章では、磁性微粒子の垂直、水平方向の位置制御を実現するために、はじめに磁性微粒子の磁気駆動用電磁石の仕様検討を行う。2.3.2 項の結果から、式 2-2～2-7 を用いると磁性微粒子に作用する力の簡易評価が可能であることが示されたため、電磁石の仕様検討ではこれらの式を用いる。磁気駆動用電磁石に求めるコンセプトは、①重力や流体抵抗に逆らって磁極方向への吸引が可能であること、②回転磁界で磁気トルクを発生させて磁性微粒子を回転させることが可能であること、③左右や上下方向に交番磁界を発生させて磁性微粒子を振動させることが可能であること、④個々の磁極の励磁用コイルを独立に制御可能であること、⑤可視化システムが組込可能であること、である。表 3-1 に、第 2 章で用いた二極電磁石の性能をまとめて示した。表中、物性データ欄にはフェライト系磁性微粒子 LD-M と純水の物性値を示した。指標とした作用力は、外部磁界による磁気力、流体抵抗、重力、浮力、ブラウン運動による作用力である。なお、ブラウン運動によって粒子に作用する力は、

$$F_h \times D_p \leq k \times T \quad (3-1)$$

ここで、 $D_p$  は磁性微粒子の直径、 $k$  はボルツマン定数、 $T$  は絶対温度を表す。二極電磁石に最大電流を印加した場合、観測領域における外部磁界と磁気勾配は、0.045 T、0.29 T/m であるため、粒径 5  $\mu\text{m}$  の磁性微粒子に作用する磁気力 1.5 pN は、重力 1.3 pN と浮力 0.6 pN の差に比べて大きく、重力に逆らって磁気駆動可能であることがわかる。一方、粒径の 3 倍の振幅で粒子を振動させる場合、磁気力 1.5 pN と流体抵抗 1.0 pN を比較すると 1 Hz 程度で振動させることが限界と考えられる（それ以上速く振動させると流体抵抗が磁気力を上回る）。ブラウン運動によって作用する力は磁気力に比べて 3 桁も小さいため粒子径 5  $\mu\text{m}$  の場合は無視できる。本章で製作する磁気駆動用電磁石では粒子振動に関する試験条件の限界値の目安を 20 Hz に引き上げることを目標とした。表 3-2 に、この時に満たすべき駆動条件や想定する作用力を示す。これより、磁気駆動用電磁石で作る磁束密度と磁気勾

配の目標値は、0.1 T、2 T/m とする。電磁石仕様や形状の検討には市販の三次元電磁界解析コード JMAG（JSOL 社）を用い、磁極形状や磁極間ギャップやコイル巻数などを変数として、磁界解析により決定した。解析モデルを図 3-1 に、最終的な電磁石仕様を表 3-3 に示す。また、製作した磁気駆動用電磁石の外観写真を図 3-2 に示す。

表 3-1 二極電磁石仕様、及び推定される磁性微粒子に作用する力

Specifications	Current	24 A	
	Magnetic flux density	0.0446 T	
	Magnetic field gradient	0.29 T/m	
	Fluid velocity	$2.0 \times 10^{-5}$ m/s	
	Frequency	1 Hz	
	Temperature	300.15 K	
	Magnetization	77283.8 A/m	
	Susceptibility	2.18	
Material Property	Density of magnetic particle	2.0 g/cm <sup>3</sup>	
	Saturation magnetization	183000 A/m	
	Saturation magnetic moment	$1.2 \times 10^{-11}$ Am <sup>2</sup>	
	Viscosity coefficient of water	0.001 kg/ms	
	Density of water	1 g/cm <sup>3</sup>	
	Boltzmann constant	$1.38 \times 10^{-23}$ J/K	
	Space permeability	$1.26 \times 10^{-6}$	
	Diameter of magnetic particle	$5.01 \times 10^{-6}$ m	
	Volume of magnetic particle	$6.58 \times 10^{-17}$ m <sup>3</sup>	
Estimated force	Magnetic force	$1.5 \times 10^{-12}$ N	
	Viscous force	$9.5 \times 10^{-13}$ N	
	Gravitational force	$1.3 \times 10^{-12}$ N	
	Buoyant force	$6.4 \times 10^{-13}$ N	
	Brownian motion (Max)	$8.3 \times 10^{-16}$ N	



次に、製作した磁気駆動用電磁石の磁界測定を行った。なお、磁性微粒子含有の石英セル（流体セル）を設置する電磁石ギャップ中心において、磁界測定範囲は上下左右 $\pm 5$  mmの範囲とし、計測は上下左右の電磁石のコイルにそれぞれ単独で直流電流を流した際の磁界を計測した。図 3-3～3-4 にそれぞれの計測結果を示した。電流（1.2 – 12 A）に比例した磁界分布となっていること、及び目標とした磁束密度と磁気勾配を満たしている（磁束密度は 24 A の時に約 0.1 T、磁気勾配は 24 A の時に約 4 T/m）ことが確認できた。

表 3-2 磁性微粒子の磁気駆動用電磁石設計仕様、及び推定される磁性微粒子に作用する力

Specifications	Current	24 A
	Magnetic flux density	0.1 T
	Magnetic field gradient	2 T/m
	Fluid velocity	$4.0 \times 10^{-4}$ m/s
	Frequency	20 Hz
	Temperature	300.15 K
	Magnetization	173282 A/m
	Susceptibility	2.18
Material property	Density of magnetic particle	2.0 g/cm <sup>3</sup>
	Saturation magnetization	183000 A/m
	Saturation magnetic moment	$1.2 \times 10^{-11}$ Am <sup>2</sup>
	Viscosity coefficient of water	0.001 kg/ms
	Density of water	1 g/cm <sup>3</sup>
	Boltzmann constant	$1.38 \times 10^{-23}$ J/K
	Space permeability	$1.26 \times 10^{-6}$
	Diameter of magnetic particle	$5.01 \times 10^{-6}$ m
	Volume of magnetic particle	$6.58 \times 10^{-17}$ m <sup>3</sup>
Estimated force	Magnetic force	$2.3 \times 10^{-11}$ N
	Viscous force	$1.9 \times 10^{-11}$ N
	Gravitainal force	$1.2 \times 10^{-12}$ N
	Buoyant force	$6.4 \times 10^{-13}$ N
	Brawnian motion (Max)	$8.3 \times 10^{-16}$ N

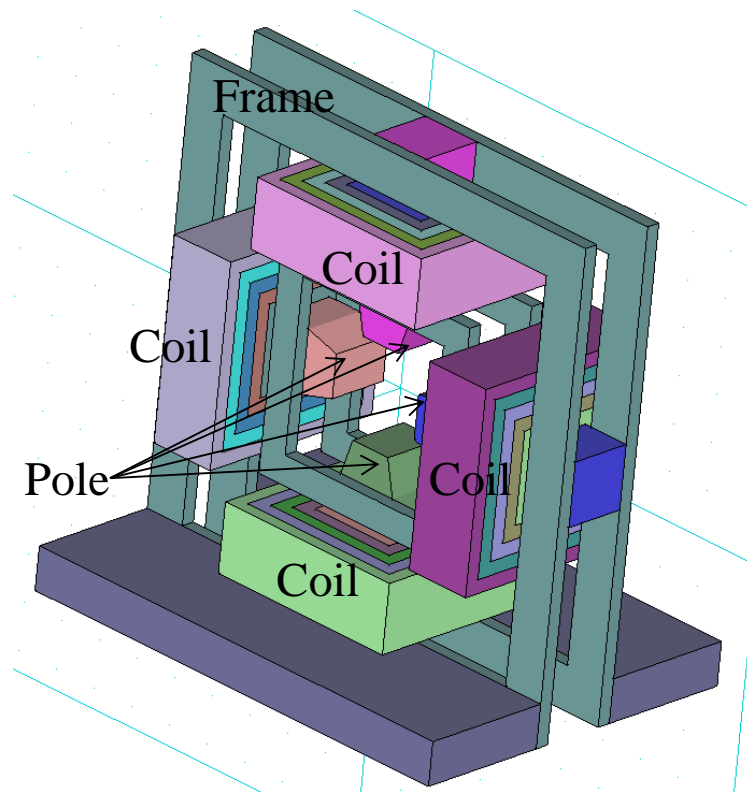


図 3-1 磁気駆動用電磁石の磁界解析用モデル

表 3-3 磁性微粒子の磁気駆動用電磁石仕様。鉄心は積層鋼板(50H470)、鋼板厚さは 0.05 mm/sheet。フレームは非磁性のステンレス鋼板(SUS304)。

General	Four solenoid type electromagnets (Holizontal, Vertical)
	Core: I shape
	Laminated core (Correspond to 50H470)
	Frame: SUS304
Coil	780 turn/pole
	Diameter of the wire: $\phi 1.5$ mm
	Inductance: 27.6 $\mu$ H
	Resistance: 2.4 $\Omega$
Gap	70 $\times$ 70 mm (Horizontal $\times$ Vertical direction)
Shape of the pole surface	Rectangular, 30 $\times$ 44 mm (Width $\times$ Depth)

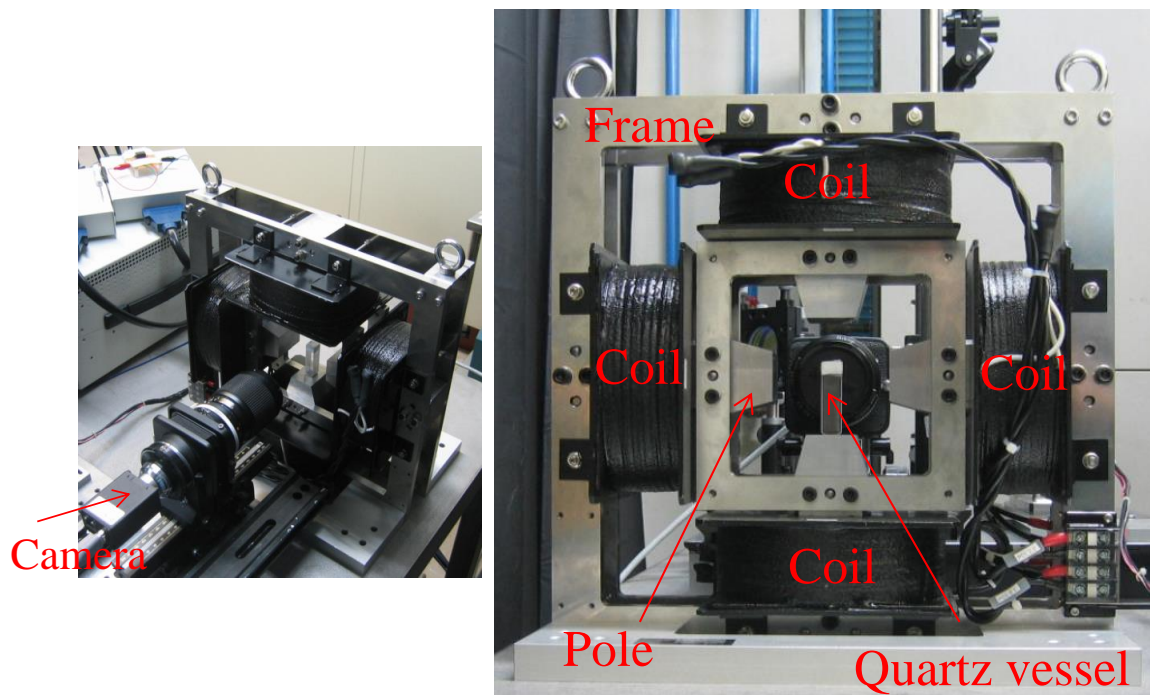


図 3-2 磁性微粒子の磁気駆動用電磁石の外観図

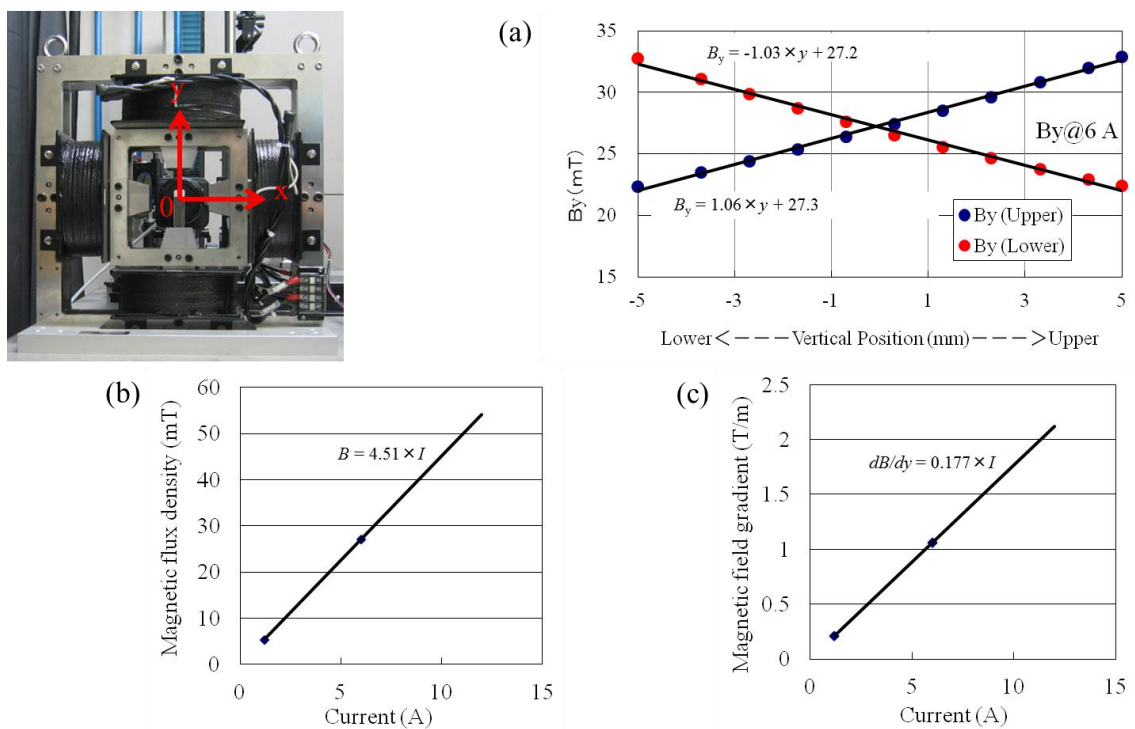


図 3-3 磁界計測結果(上下電磁石による垂直方向成分)。(a)上や下コイルに 6 A 通電時の磁束密度垂直成分の垂直方向分布、(b)磁気力を算出する際にコイル電流から磁束密度を計算、(c)電流から磁気勾配を算出する際に使用。

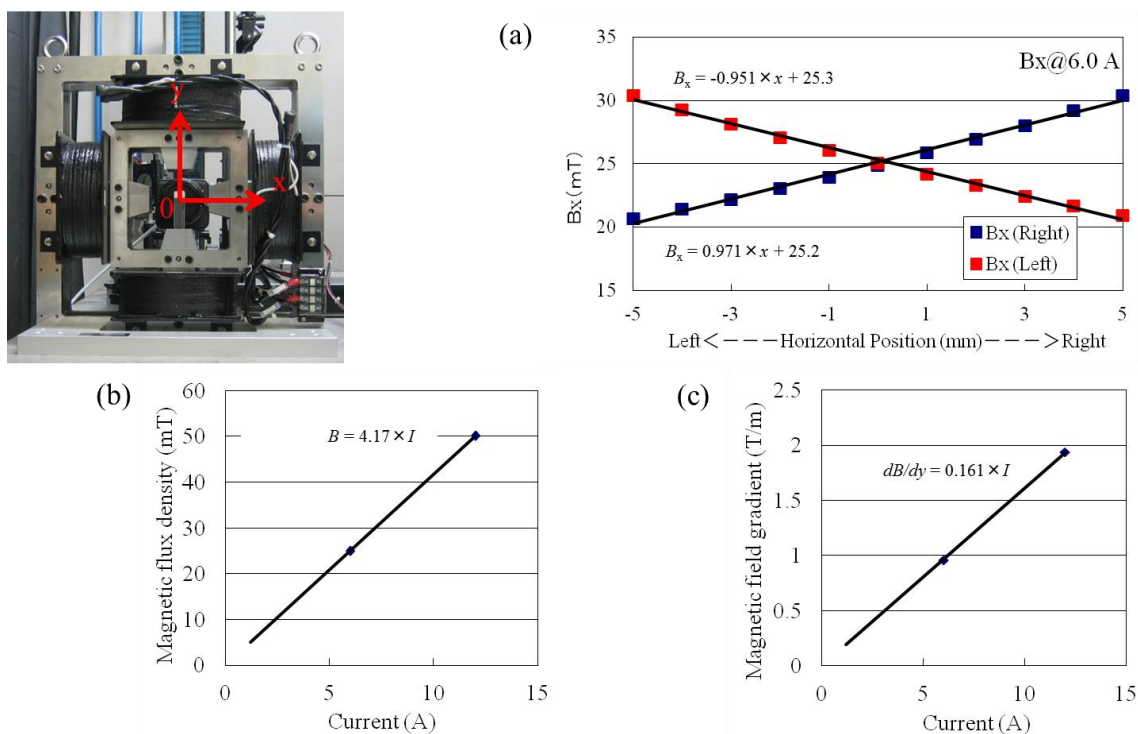


図 3-4 磁界計測結果(左右電磁石による水平方向成分)。(a)左や右コイルに 6 A 通電時の磁束密度水平成分の水平方向分布、(b)磁気力を算出する際にコイル電流から磁束密度を計算、(c)電流から磁気勾配を算出する際に使用。

### 3.2.1.2 磁性微粒子の非接触磁気把持用定値制御システム

はじめに、磁力支持天秤の基本原理を示す。作用力を計測する非導電性、非磁性の対象物内に永久磁石をあらかじめ組み込んでおく。永久磁石周辺の上下左右前後に電磁石を配置し、また対象物の空間的な位置を取得するためにカメラを配置する。電磁石の電流を調整し、対象物を位置制御することにより空間中に非接触で浮上、静止させる。各電磁石に流している電流から対象物に作用している磁気力の大きさと方向を算出し、重力の影響を除く事で対象物に作用している重力以外のその他の力（流体抵抗など）を求めることができる。対象物に重力のみが作用している場合は、対象物に作用する力がバランスしていれば、垂直方向の磁気力が重力と等しいことを意味する。

磁力支持天秤の基本原理を応用して磁性微粒子に作用する力を計測するためには、①流体中で浮遊や流動している磁性微粒子のうち、特定の粒子をトラッキングし、②目標座標地点において外部磁界による磁気力とその他の作用力とをバランスさせて非接触磁気把持する定値制御を行う必要がある。図 3-5 に磁性微粒子の定値制御のためのブロック図を示す。制御ループタイミングごとに視野内の粒子画像を取得し、目標としている粒子を画像

処理によって認識し、その座標をフィードバック信号とする。フィードバック信号と目標座標とのずれを基準信号として PID 制御器に入力し交流安定化電源への指令電圧を算出し、交流安定化電源からの供給によって電磁石に電流を流すことで磁性微粒子に磁気力を作用させ粒子座標の補正を行う。図 3-6 に磁性微粒子用の磁気駆動装置の概略図を示す。画像集録、画像処理、粒子トラッキング、PID 制御といった一連の処理を制御ループ周期 10 ms で行うことを目標とするため、Real-Time OS 内蔵コントローラ（ナショナルインスツルツメンツ社）を利用してハードウェアタイミングでの制御システムを構築した。なお、制御システムの開発には LabVIEW（ナショナルインスツルツメンツ社）を用いた。画像集録用のカメラは最大で 100 fps での画像集録が可能であり、集録した画像をコントローラに取り込み、画像を二値化して 1 フレーム内の粒子情報（粒子座標、粒子断面積）を認識し、それを入力信号として PID 制御を行い、上下左右の電磁石への指令電圧を算出し 4 台の交流安定化電源を介して各電磁石へ出力するとともに、粒子画像や座標、指令電圧情報などを LAN 経由でホストコンピュータに送り、リアルタイムで粒子画像や磁気力などの情報をモニタに出力、あるいは保存する。

上述の磁性微粒子用の磁気駆動装置の概略は次の通りである。コントローラは Quad core で Real-time OS を有する装置を用いた。システムの基本方針は、①確定性が必要なカメラの制御や画像集録、トラッキング、電源への指令信号の算出や出力は、3 つの CPU をそれぞれ専有させて処理を行い、残る一つの CPU を確定性が不要な汎用の処理部に用いる、②粒子トラッキングは連続取得した画像間において最も近接している粒子同士を同一の粒子と見なしてペアリングを行い、粒子同士の重なりや散乱光の急激な減衰による粒子の消失などの問題に対しては、トラッキング対象粒子の急激な位置変化や断面積変化が生じるため、そのような事態が検知されたら所定の画像数は判定を待機させることで回避する、③処理に時間がかかる動画再生はホストコンピュータ側で行い、④定値制御は 10 ms ごとの集録画像から得られる粒子座標と目標座標との偏差に対して PID 制御を適用することとした。

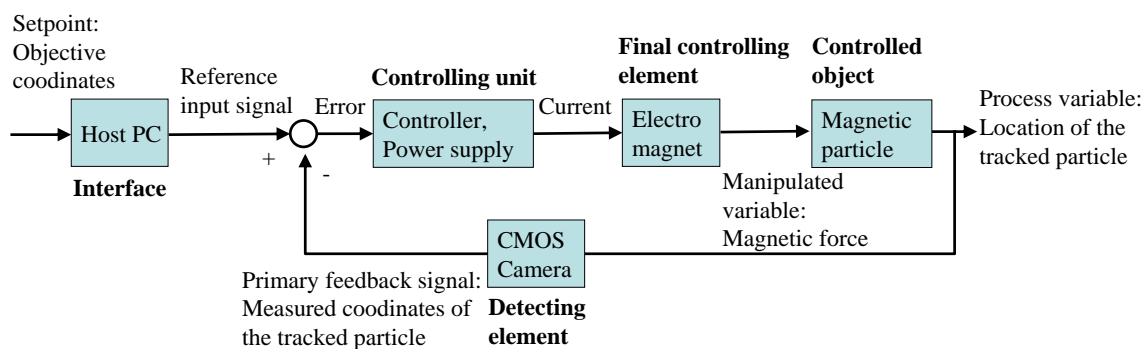


図 3-5 非接触磁気把持用の定値制御のブロック図。Interface: 設定部(非接触磁気把持地点の目標座標、その他諸設定)、Controlling unit: 調整部(PID 制御部、交流安定化電源から電流供給)、Final controlling element: 操作部(水平／垂直電磁石で磁気力発生)、Controlled object: 操作対象(磁性微粒子)、Detecting element: 検出部(カメラ取得画像を二値化し個々の粒子を検出)

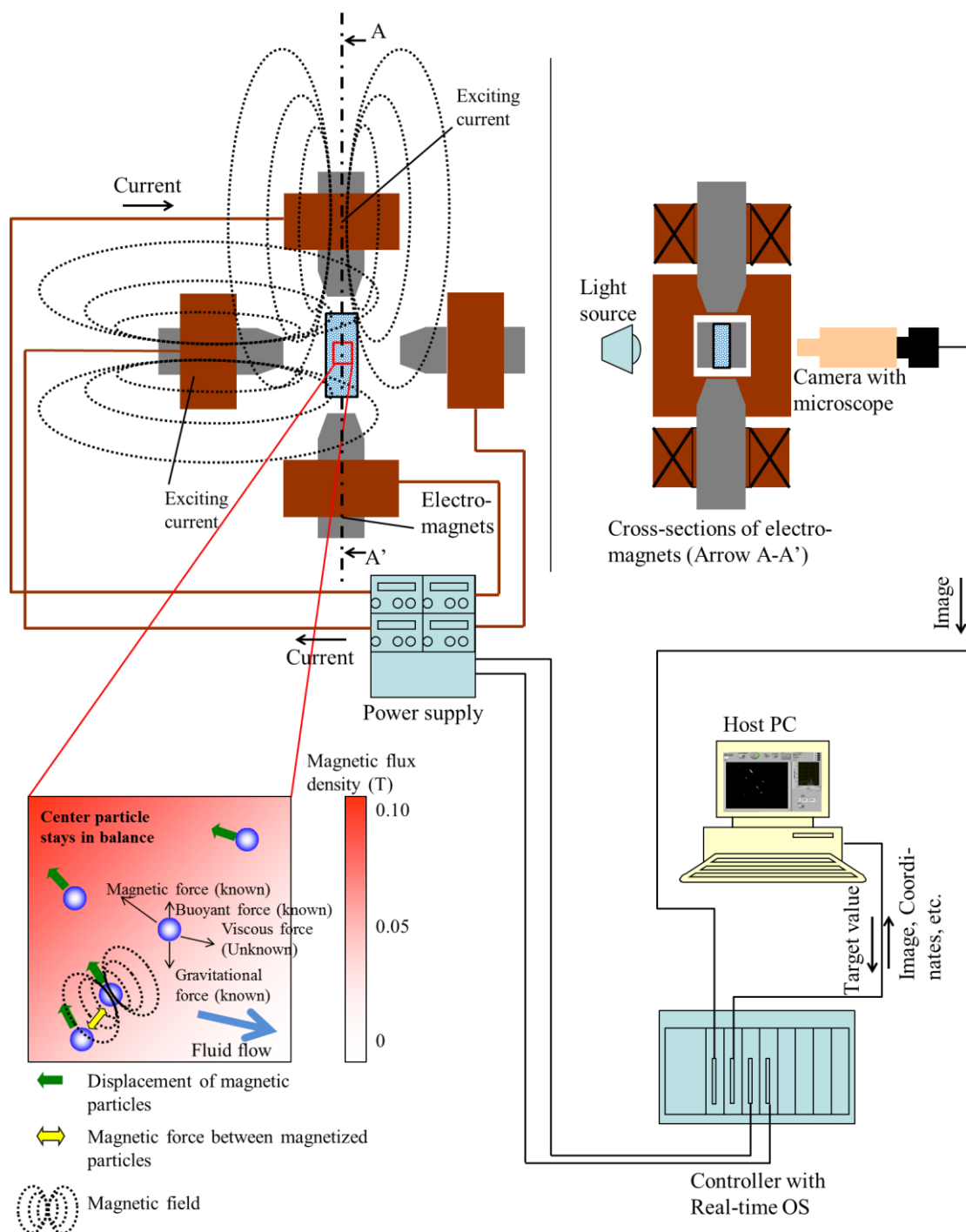


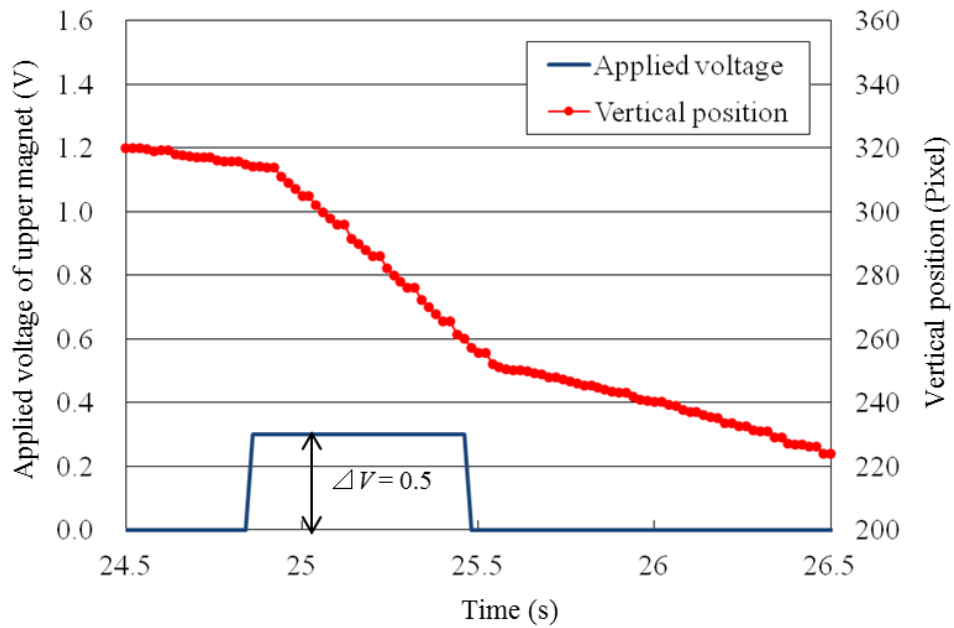
図 3-6 磁性微粒子の非接触磁気把持用の磁気駆動装置の概略図。基本的な構成は、水平／垂直方向電磁石、交流安定化電源、制御器、マイクروسコープと高速カメラ、パソコンからなる。システムブロック図は図 3-5 を参照。電磁石ギャップ中心に流体セルを配置。上図は図 2-2a の光学システム構成（白色光源を利用した可視化システム）。

PID 制御パラメータである比例係数  $K_p$ 、積分係数  $T_i$ 、微分係数  $T_d$  は、ジューグラー ニコルスの方法を用いて、ステップ入力に対する制御量（粒子位置）の応答特性を取得することで初期値を決定した。図 3-7 にパラメータ決定に用いた磁性微粒子の応答特性を示した。得られた各係数は以下の通りである。

$$K_p = 0.0648, T_i = 3.334 \times 10^{-3}, T_d = 8.335 \times 10^{-4} \quad (3-2)$$

なお、上記の値は数マイクロメートル～数十マイクロメートルのフェライト系磁性微粒子 LD-M で算出したものであり、粒子径のオーダーが変わる場合には必要に応じて PID 制御パラメータを準備し、粒子トラッキング時の断面積の算出結果によって PID 制御パラメータを変更する。





$$L=1.667 \times 10^{-3} \text{ min}, T=0.01167 \text{ min}, K=129.58$$

$$K_p=1.2 \cdot T/K \cdot L=0.0648, T_i=2 \cdot L=3.334 \times 10^{-3}, T_d=0.5 \cdot L=8.335 \times 10^{-4}$$

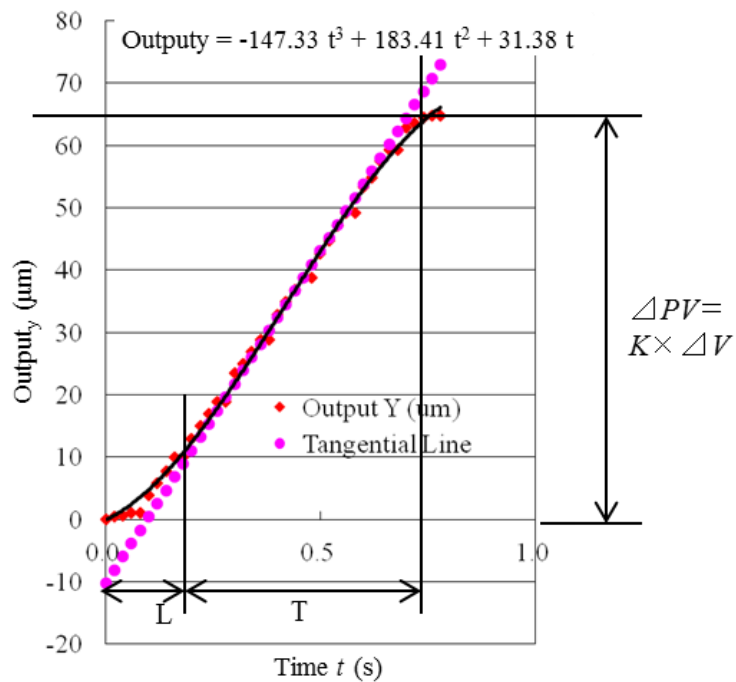


図 3-7 ステップ入力に対する磁性微粒子の応答特性。上側電磁石に印加時の粒子位置変化データから、ジエグラー ニコルスの方法によって、ステップ入力(1.5 V、約 1.65 s)に対する制御量(粒子垂直方向変位量)の応答特性を取得することで PID 制御係数の初期値を決定。

## 3.2.2 磁性微粒子の非接触磁気把持方法と作用する力のリアルタイム評価方法

2.2 節で示した Mn-Zn 系のフェライト微粒子 LD-M (粒子径: 平均 12  $\mu\text{m}$ 、粒子径分布: 300 nm – 300  $\mu\text{m}$ ) のみを用いた。磁化特性は図 2-5 に示したように、飽和磁化  $1.8 \times 10^5$  A/m、磁界強度  $4 \times 10^4$  A/m (磁束密度 0.05 T) における磁化率  $\chi$  は約 2.3 であった。

### 3.2.2.1 磁性微粒子挙動の可視化、及び粒子トラッキング方法

図 3-8 には磁気駆動用電磁石に白色光源による可視化装置とレーザ光源による可視化装置を組み込んだ非接触磁気把持用の磁気駆動装置の外観写真を示す。あらかじめ、ホストコンピュータ側のインターフェース画面にてトラッキング対象とする微粒子の粒子径を入力し、必要に応じて二値化や PID 制御の比例、積分、微分係数の変更を行う。粒子径 300 nm – 300  $\mu\text{m}$  の分布をもった Mn-Zn 系フェライト微粒子を純水の入った流体セル (10 × 10 × 45 mm) に封入し、マイクロスコープにより拡大した画像を、高速カメラ (CMOS、100 fps) を介して画像処理装置に 1 s あたり 100 枚撮影し取り込んだ。画像処理装置では、取得した画像を背景と微粒子とに二値化処理し、すべての微粒子について座標と断面積を算出した。10 ms ごとの画像を比較し、探索範囲内にある位置が最も近い粒子を同一粒子と見なし追跡させた。また、追跡中の粒子には円状のマーカを付した。後ほど制御対象粒子以外も含めた粒子軌道解析によって粒子位置や粒子速度の計算を実施するために、100 ms 間隔で間引いた画像を AVI 形式にて動画保存し、10 ms ごとにトラッキング対象の粒子座標や断面積の情報をテキスト形式で保存した。光源には粒子径  $\mu\text{m}$  以上の微粒子を観察するための白色光源 (ハロゲンランプ、100 W) と、粒子径  $\mu\text{m}$  以下の微粒子も観察可能とするためのレーザ光源 (YAG laser, 20 mW, 532 nm, CW) の 2 種類を用いた。

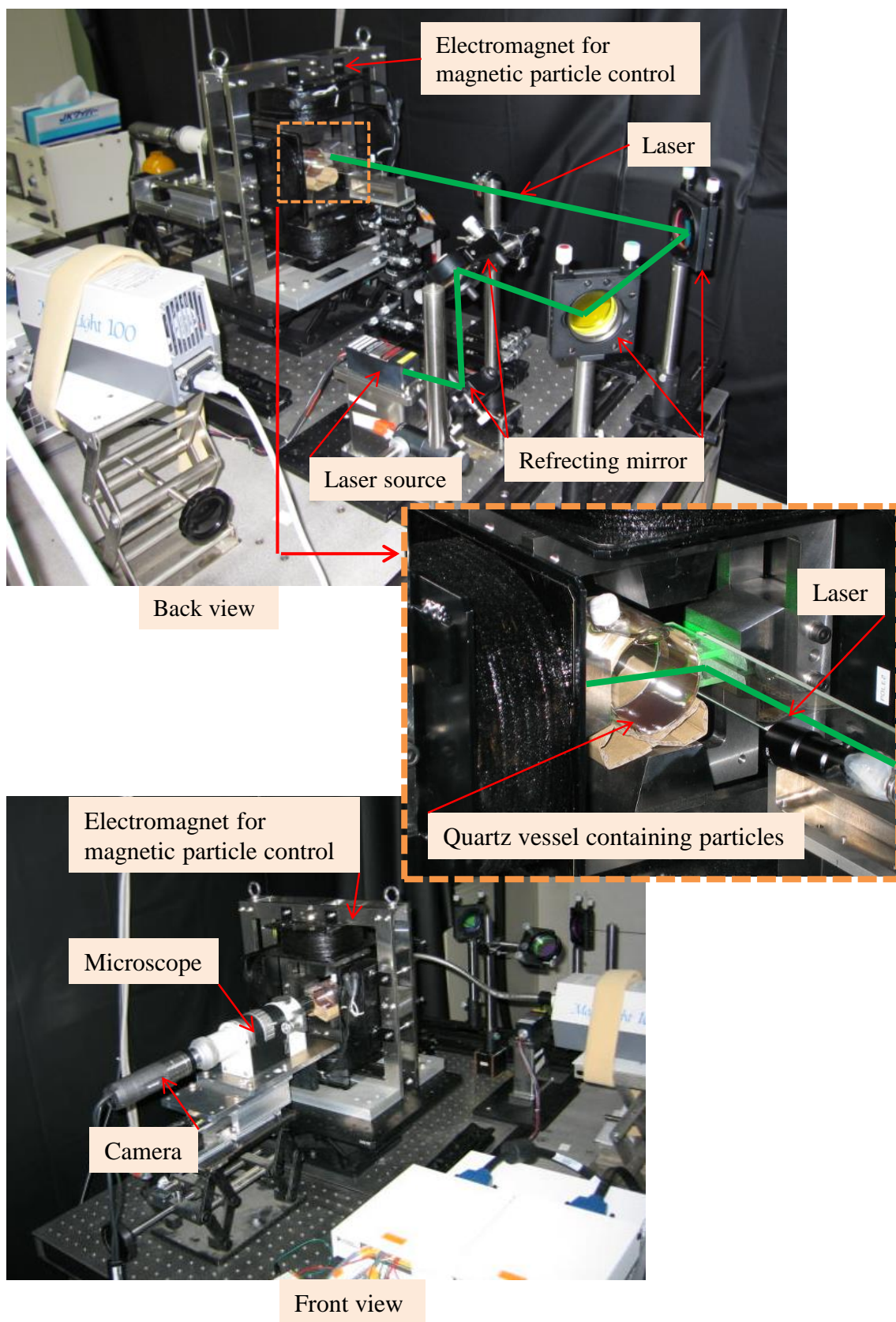


図 3-8 非接触磁気把持用の磁気駆動装置の外観写真

白色光源はガラスセルの背面から照射し、レーザ光源はガラスセルの側面から照射した。光源を二種類用いている理由は、前述したように、白色光源では微粒子の輪郭をはっきり見ることができ、断面積を確認しやすい一方、粒子径  $\text{nm}$  オーダーの粒子は光の波長とカメラの解像度との問題から見ることができない。他方、レーザ光源では、粒子から発せされる散乱光を観察することによって、粒子径以上に大きく見ることができ、ナノ微粒子の位置を追跡することが可能となるからである。本章では断面積を容易に特定でき、磁性微粒子に作用する力の理論データと実験データとの比較を容易に行えるように、磁性微粒子の非接触磁気把持試験を行う際には、粒子径  $\mu\text{m}$  以上の磁性微粒子を対象として白色光源による可視化装置を用いた。

### 3.2.2.2 非接触磁気把持方法

微粒子のトラッキング試験と同様に、粒子径  $300 \text{ nm} - 300 \mu\text{m}$  の分布をもった Mn-Zn 系フェライト微粒子を、水で充填されたガラスセル内に封入（流体セル）し、磁性微粒子が浮遊している状態で上下、左右に設置されている電磁石磁極間のギャップ部中心に流体セルをセットした。各電磁石は I 字型の鉄心入りの電磁石で、独立して制御可能とするために別々の電源から電流が供給された。マイクロスコープで拡大された画像を高速カメラによって  $1 \text{ s}$  あたり  $100$  枚撮影し、画像処理装置で取得した。画像処理装置では、取得した画像を二値化処理によって背景と粒子とに分け、すべての粒子について図心の座標と断面積を算出した。 $10 \text{ ms}$  間隔で取得した画像  $2$  枚を順次比較し、探索範囲内にある断面積が最も近い粒子を同一粒子と見なし追跡させた。また、追跡中の粒子には円状のマーカを付した。 $10 \text{ ms}$  ごとに、あらかじめインターフェース画面にて設定した定値制御の目標座標と現在追跡中の粒子座標との偏差を算出し、PID 制御によって位置制御をおこない目標とする磁性微粒子を目標座標に上下左右に設置された四台の電磁石からの磁気力にて非接触磁気把持させる。すなわち、追跡対象の磁性微粒子に作用している力と目標地点において釣り合わせるように、上か下、及び左か右の電磁石に流す電流を制御ループごとに調整して磁気力を発生させて液中にて非接触で対象とする磁性微粒子を静止させた。

### 3.2.2.3 リアルタイム評価方法

前述の第 3.2.2.1 と第 3.2.2.2 と同様に、粒子径  $300 \text{ nm} - 300 \mu\text{m}$  の分布をもった Mn-Zn 系フェライト微粒子を、水で充填されたガラスセル内に封入し、磁性微粒子が浮遊している状態で上下、左右に設置されている電磁石磁極間のギャップ部中心にセットした。各電磁石は I 字型の鉄心入りの電磁石で、独立して制御可能とするために別々の電源から電流が供

給された。マイクロスコープで拡大された画像を高速カメラによって 1 s あたり 100 枚撮影し、画像処理装置で取得した。画像処理装置では、取得した画像を二値化処理によって背景と微粒子とに分け、すべての微粒子について図心の座標と断面積を算出した。10 ms 間隔で取得した画像 2 枚を順次比較し、探索範囲内にある断面積が最も近い粒子を同一粒子と見なし追跡させた。また、追跡中の粒子には円状のマーカーを付した。10 ms ごとに、あらかじめインターフェース画面にて設定した定値制御の目標座標と現在追跡中の粒子座標との偏差を算出し、PID 制御によって位置制御をおこない目標とする磁性微粒子を目標座標に上下左右に設置された 4 台の電磁石からの磁気力にて非接触磁気把持させる。磁性微粒子に作用している力の方向と大きさは、追跡対象の磁性微粒子に作用している力と目標地点において釣り合わせるように、上下左右 4 台の電磁石に流す電流を調整して磁気力を発生させて非接触磁気把持していることを利用し算出した。すなわち、各電磁石の電流から算出したギャップ中心の磁界強度と磁気勾配と、画像処理によって求めた体積（円柱と近似）とを式 3-3 に代入し、磁性微粒子に作用している磁気力を求めた。ここで、磁性微粒子の磁気モーメントの向きによらず磁気勾配の高い方向へ磁気力で吸引することが目標であるため、上下電磁石のいずれか一方、及び左右電磁石のいずれか一方のみの組み合わせで電流を流し、同時に上下、あるいは左右に吸引することがないようにした。外部磁界によって磁性微粒子が 10 ms で応答することは 2.3.2 項の図 2-14～図 2-15 で実証済みであることから、近接磁性微粒子が作る磁界による粒子間磁気力、磁性微粒子自身に作用している流体抵抗力、重力や浮力などの定量評価を行えるように、上記の画像処理と PID 制御を制御ループ速度 10 ms で確定的に行った。なお、外部磁界による磁気力以外の流体抵抗力、重力、浮力は式 2-3～式 2-7 を参照し、近接磁性微粒子の発生する磁界による磁性微粒子間に作用する磁気力は式 3-4 から算出する。磁性微粒子の飽和に限らず、外部磁界によって磁性体に作用する磁気力は、

$$\mathbf{F}_p = V_p \cdot \mu_0 \mathbf{M}_p \cdot \text{grad}(\mathbf{H}_0) \quad (3-3)$$

ここで、 $V_p$  は粒子体積、 $\mathbf{M}_p$  は微子の磁化、 $\mathbf{H}_0$  は外部磁界を表す。また、本章以降では磁性微粒子が鎖状にクラスタ化する現象を簡易に扱うために減磁率は 0 と見なした。

近接磁性微粒子が任意の地点に作る磁束密度は、

$$\mathbf{B}_r = \mu_0 \times (\mathbf{P}_m / (2\pi \times L_p^3)) \times \cos \theta \quad (3-4-1)$$

$$\mathbf{B}_\theta = \mu_0 \times (\mathbf{P}_m / (4\pi \times L_p^3)) \times \sin \theta \quad (3-4-2)$$

ここで、 $\mathbf{P}_m$  は磁気モーメントで磁化  $\mathbf{M}_p$  と粒子体積  $V_p$  との積、 $L_p$  は任意の地点との距離、 $\theta$  は磁気モーメントのベクトルと任意の地点までのベクトルとの角度を表す。磁化されている磁性微粒子間に作用する粒子間磁気力は、式 3-4 から対象粒子周辺の磁界と磁気勾配を算出したうえで、式 3-3 によって粒子間磁気力が計算される。

後ほど制御状態の確認や、制御対象粒子以外も含めた粒子軌道解析によって粒子位置や粒子速度の計算を実施するために、100 ms ごとの画像を AVI 形式にて動画保存し、10 ms ごとの粒子座標や断面積、電流の情報をテキスト形式で保存した。

作用力計測の手順は次の通りである。あらかじめ計測対象とする磁性微粒子の断面積の範囲を指定しておき、上側電磁石のみに矩形波状の電流を流した。追跡されている微粒子が上下振動している場合は磁気力に応答可能な強磁性微粒子であるため、非接触磁気把持するための制御に移行させた。非接触磁気把持の制御を開始したら、各電磁石に流している電流から磁性微粒子に作用している磁気力を算出し、微粒子画像とともに磁気力を 100 ms 間隔でモニタに表示させ、オンラインで粒子挙動と作用力の観察を行った。

次に、外部磁界によってトラッキング対象である磁性微粒子に作用する磁気力、重力、及び浮力（以上は画像処理データと理論式を使って計算する力）以外の作用力に関する算出方法について示す。計測する粒子体積や電磁石のコイル電流から算出する重力や浮力や磁気力の時間変化の一例を図 3-9 に示す。図 3-9 (a) には、重力と浮力は鉛直方向のみに作用する力、磁気力は水平方向の電磁石のコイル電流から算出した力を磁気力（水平方向成分）とし、垂直方向の電磁石のコイル電流から算出した力を磁気力（鉛直方向成分）とし、それらの時間変化を示している。いずれの力も時間変化がほとんど見られず、良好にバランスした状態となっている。図 3-9 (b) には、左図の 20 s 時点での各力のベクトル図を示しており、その他の力は、重力と浮力と磁気力のベクトル和から算出される。重力と浮力と磁気力以外の支配的な力が流体抵抗のみである場合、ベクトル和から算出されるその他の力が流体抵抗と見なされる。次に、把持されている磁性微粒子近傍に他の磁性微粒子が存在する場合、その他の力には粒子間磁気力が含まれる。図 3-10 には、図 3-9 と同様に重力と浮力と磁気力とその他の力の時間変化の一例を示した。図 3-10 (a) では、その他の力に時間変動は見られず、支配的な力は流体抵抗のみと見なす。一方、図 3-10 (b) では、その他の力が時間の経過とともに顕著に増加しており、流体抵抗以外の支配的な作用力が加わっていることを示している。後述するが、取得している画像情報から近接する磁性微粒子が存在することが確認できる場合、時々刻々変化するその他の力から増加を開始する前のその他の力を差し引いた力が粒子間磁気力と見なす。

なお、ここではあらためて示していないが重力（浮力との差分）を直接計測する方法は、

前述の方法で磁性微粒子を非接触把持状態で静置し、流体セル内の流れが止まった状態の磁気力と等価であることから算出する。

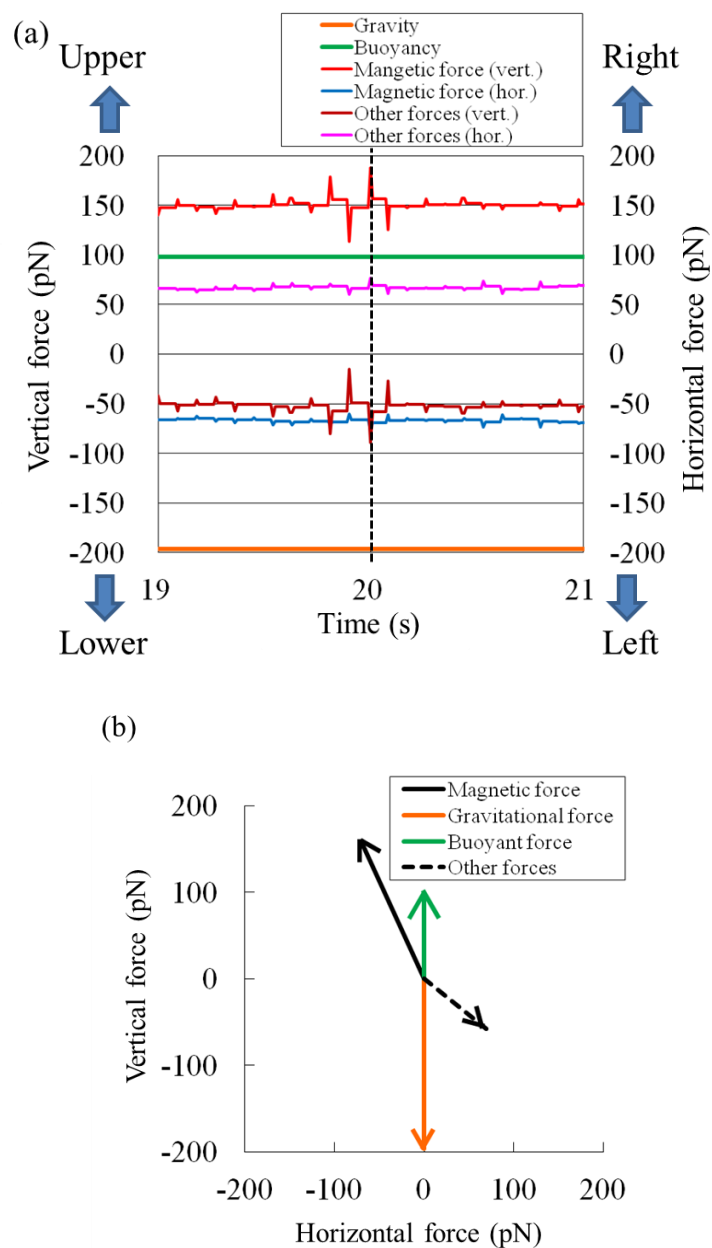


図 3-9 把持されている磁性微粒子に作用する力の時間変化(a)、及び 20 s 時点での作用力のベクトル図(b)。(a)は安定して非接触磁気把持されている状態における重力(Gravity)、浮力(Buoyancy)、磁気力(Magnetic force (Vert. & Hor.))とその他の力(Other force)の時間変化を表している。その他の力とは、(b)のベクトル演算から求まる力で、既知の重力、浮力、磁気力以外の力を意味する。

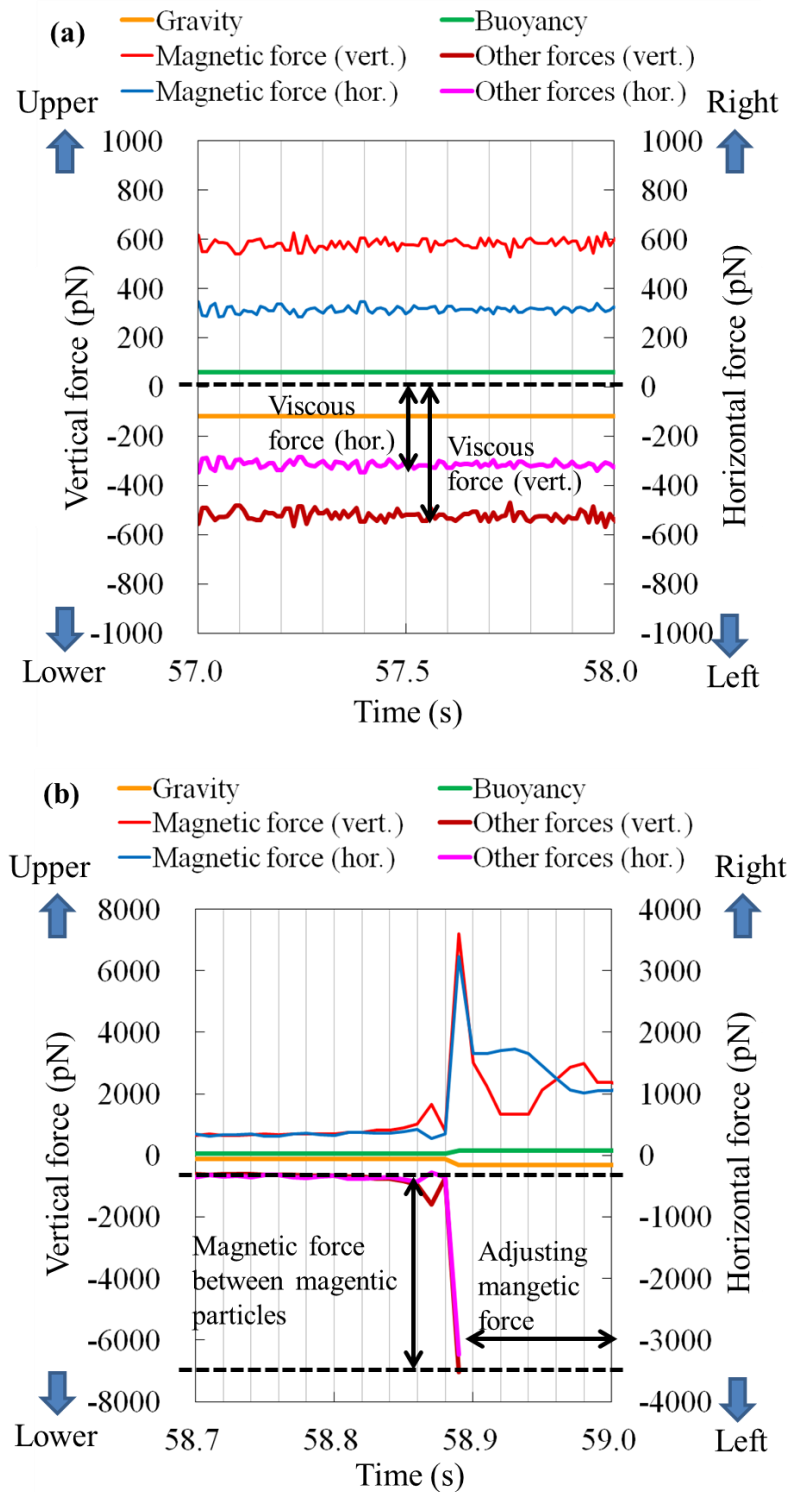


図 3-10 把持されている磁性微粒子に作用する力の時間変化(近接する磁性微粒子が把持されている磁性微粒子周辺に存在する場合)。(a)は近接する磁性微粒子が遠方にある場合、(b)は近接する磁性微粒子と把持されている磁性微粒子とが粒子間磁気力で結合する場合の作用力の時間変化を表す。



### 3.2.3 磁性微粒子挙動の可視化、及び粒子トラッキング結果

純水で充填されたガラスセル内の磁性微粒子の動きを、マイクروسコープを介した高速カメラ（100 fps）で 10 ms 間隔の画像として取得した。図 3-11 には、Mn-Zn 系フェライト微粒子を対象とした、白色光源による画像（二値化変換後の画像）、及びレーザ光源による画像（二値化変換後の画像）の 4 s ごとの連続画像の一例を示した。なお、それぞれの光源による画像において、“○”で囲まれた微粒子がトラッキング対象の粒子であり、8 s 間のトラッキング結果を示している。このケースにおいては、粒子は初期の流体の流れの影響を受けて主に鉛直上方向に移動していた。図 3-11 に示されているように、白色光源とレーザ光源のいずれの方法によっても対象の微粒子を良好にトラッキングできている。レーザ光源による可視化では、白色光源による可視化に比べて、粒子径  $1\text{ }\mu\text{m}$  以下の粒子の散乱光も観測することができるため、画像内に多くの粒子が確認できた。なお、二種類の可視化方法による観測は同時ではなく、同一ガラスセル内の粒子群を観察したものである。

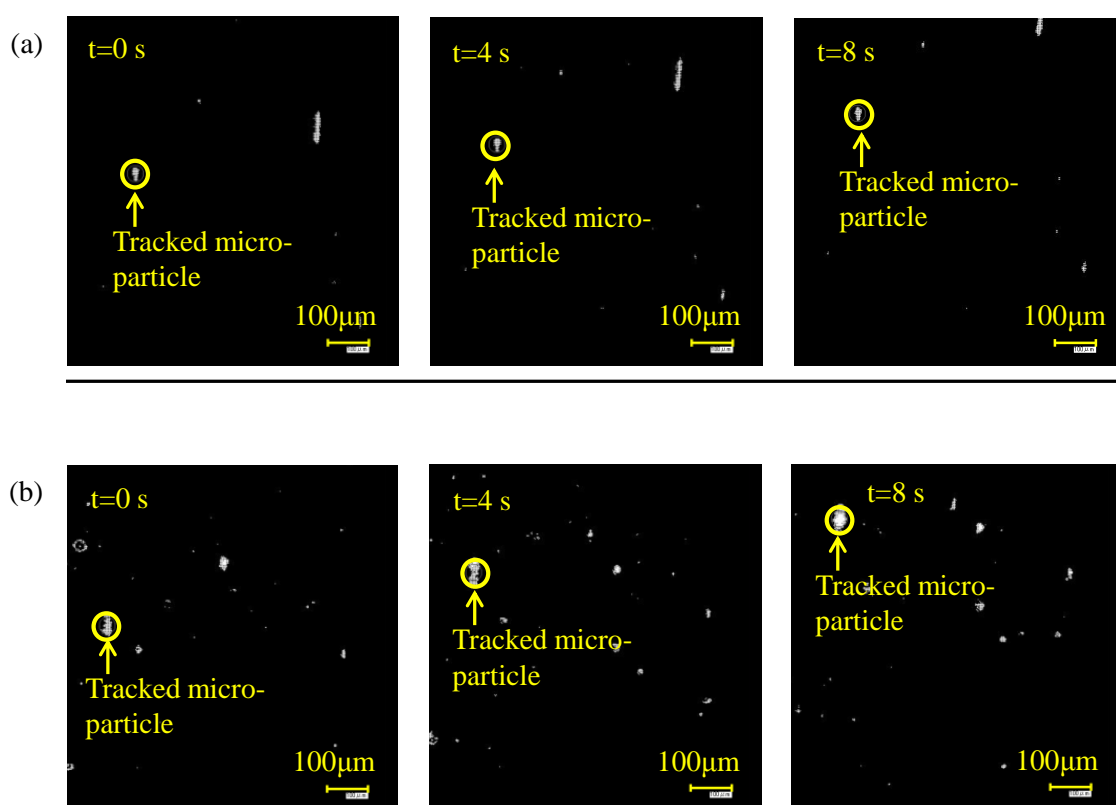


図 3-11 粒子挙動の可視化と粒子トラッキング試験。(a)は白色光源による可視化システムで取得し二値化処理によって粒子をトラッキングしている連続画像、(b)はレーザ光源による可視化システムによる二値化処理後の連続画像。トラッキング対象の磁性微粒子は画像中の黄色で囲われている。

### 3.2.4 磁性微粒子の非接触磁気把持とリアルタイム作用力評価結果

本節では、磁性微粒子自身に作用している磁気力を容易に評価するために、ブラウン運動の影響を受けにくく、微粒子の断面積を観察しやすい、粒子径が $\mu\text{m}$ 以上の磁性微粒子を対象とした。そして3-2節で述べたように、トラッキングされている磁性微粒子の粒子座標をフィードバックしたPID制御による磁性微粒子の非接触磁気把持と作用する力の評価を行った。

図3-12（左）に、セル中に浮遊しているフェライト微粒子が矩形波状の磁気力によって上下運動している状態から、定値制御が開始されて目標地点に誘導されるまでの磁性微粒子の連続画像の一例を示した。また、安定して非接触磁気把持されるまでの磁性微粒子の粒子座標変化（0–10 s）、及びその後15 s間の粒子座標変化（10–25 s）の一例を図3-12（右）に示した。水平垂直方向の磁気力で空間中に非接触磁気把持された磁性微粒子の粒子径は約 $20\mu\text{m}$ で、数秒の上下駆動ののち、定値制御移行後約3 sで目標座標付近に誘導され安定した。図3-12（左）の連続画像の3–3.5 s時に示されているように、定値制御に移行した際に、移動方向に別の磁性微粒子が存在していたため、目標座標に移動する過程において粒子間力で粒子結合して非接触磁気把持されている。制御中に粒子結合などが起こった場合には、結合後の形状の重心を瞬時に算出し位置制御を継続するため今回のようなケースにおいても問題なく定置制御が実施されていることが確認できる。図3-13には、上下運動から非接触磁気把持されるまでの水平、垂直方向の電磁石における制御電流変化を示した。これより、目的地点付近までは左側と下側の電磁石に制御電流を流すことで左下方向に磁気駆動され、その後、重力、浮力と流体抵抗とをバランスさせるべく左上向きの磁気力を発生させて対象粒子は目標座標付近に静止した。

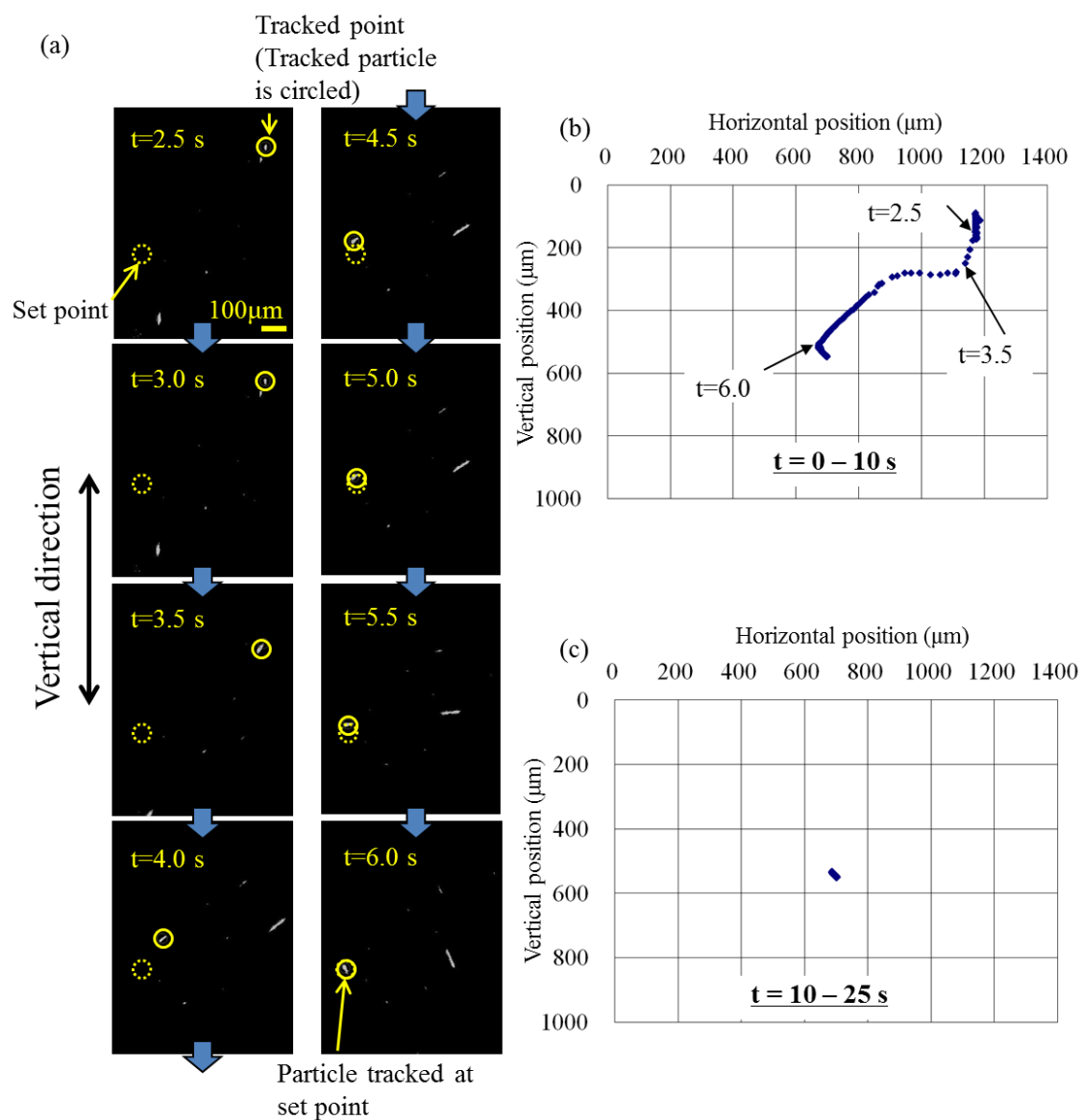


図 3-12 磁性微粒子の非接触把持の連続画像(左)、及び粒子座標の時間変化(右)。(b)には非接触磁気把持を開始してから10 s間の粒子位置変化を示す。(a)には2.5 s以降5 sごとの粒子画像をそれぞれ示す。(c)は set point に非接触磁気把持が完了してから15 s間の粒子位置変化を示す。PID 制御によって所定の位置に把持され続けていることが表されている。

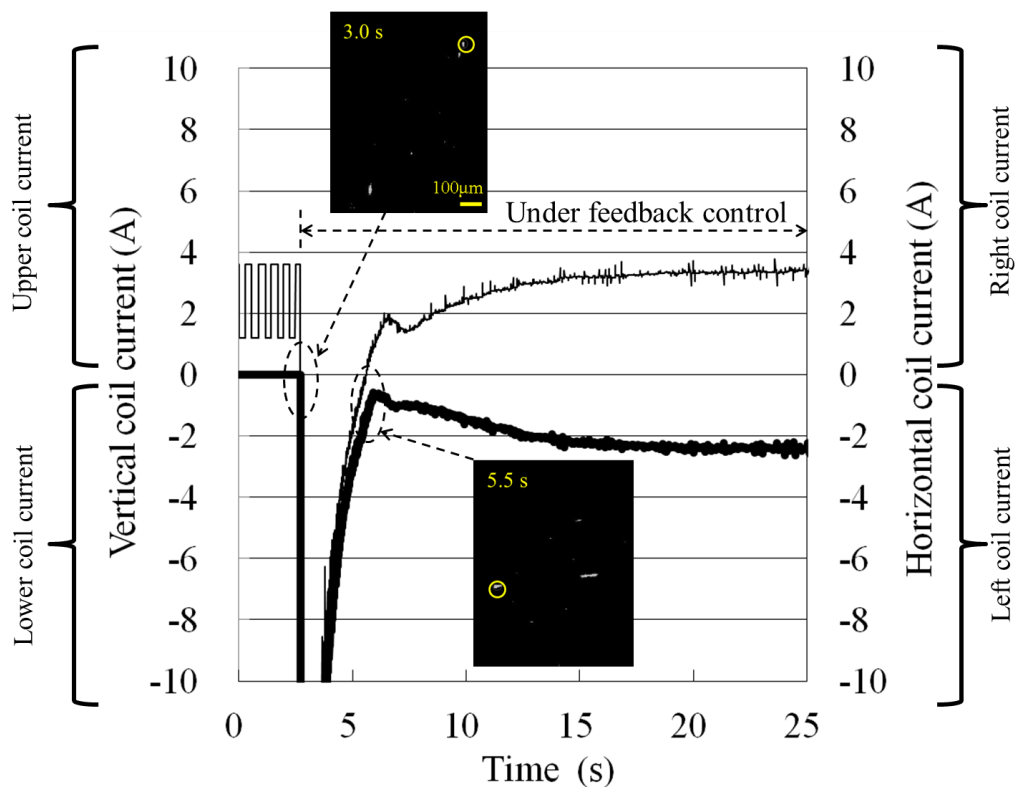


図 3-13 非接触磁気把持に至る水平、垂直方向の電磁石における制御電流変化。縦軸、+は上か右方向にある電磁石への通電、-は下か左方向の電磁石への通電。0 - 2.5 s 間で垂直方向磁界のみを励磁し、垂直方向の粒子変化があるか否かを確認し対象が磁性微粒子であるかを確認。その後、非接触磁気把持制御を開始。この例では、およそ 7 s 以降、安定的に非接触磁気把持されている。なお、図中、細い線は垂直方向コイルの電流、太い線は水平方向コイルの電流を示す。

図 3-14 には非接触磁気把持対象の磁性微粒子（円で囲われた粒子）の周辺粒子（8 つの粒子）の速度変化（図 3-14(b)）を、録画した動画の粒子軌道解析から算出し示した。また、図 3-14(a)には 0 - 1.5 s 間の粒子軌道を実線で示した。非接触磁気把持対象以外の微粒子は周囲の流れによって画面右上から左下の方向に流れていた。図 3-15 には、図 3-14 で示した流速変化が周囲で生じている同時刻における水平、垂直方向電磁石への制御電流変化を示した。制御電流変化から外部磁界による磁気力は周囲流体の流れに対抗する右上方向に作用していること、及び流速変動と制御電流の変化の傾向が一致することがわかった。

次に、非接触磁気把持中に近接してきた他の磁性微粒子との粒子間力による粒子結合に至る粒子の連続画像の一例を図 3-16（左）に示した。また、図 3-16（右）には、粒子結合

時の水平、垂直方向の電磁石への制御電流変化を示した。二つの図より、58.7 s 付近で水平、垂直方向の制御電流が大きくなり、急速に近接してきている磁性微粒子が引き寄せられ、58.9 s に最大値を瞬間的に示した直後に二つの磁性微粒子が結合し、59.6 s には再び結合後の磁性微粒子クラスタが非接触磁気把持の状態になったことが示されている。制御電流が粒子結合前に比べて粒子結合後に減少しているのは、結合したことによって磁性微粒子の磁化が増加し、把持に必要な磁気力を発生させるために必要なコイル電流が減少したことを表しているからである。

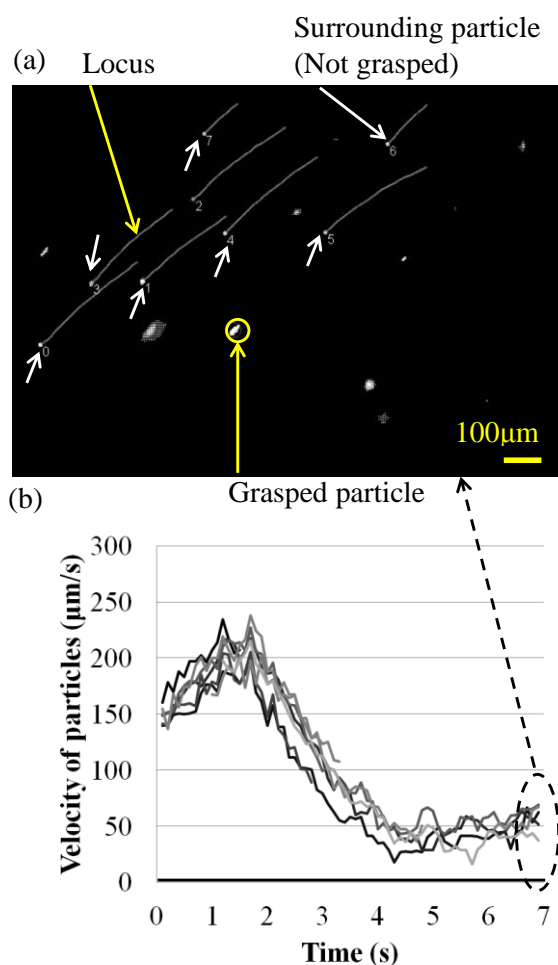


図 3-14 非接触把持中の粒子の周囲粒子の流線と流速変化。(a)黄色で囲われた粒子が非接触磁気把持されている磁性微粒子で、白の矢印は磁化が小さく磁気力に影響されず流体にのって移動している周辺磁性微粒子、周辺磁性微粒子の後方の流線は約7 s間の粒子移動の軌跡を表している。(b)には周辺磁性微粒子の移動速度を粒子トラッキングによって算出しその時間変化を示す。

以上の結果から、この非接触磁気把持用の磁気駆動装置（磁気駆動用電磁石と可視化システムと定値制御システムとの組み合わせ）において特筆すべきことの一つは、図 3-12 に示されているように、流体中に浮遊、流動している多数の磁性微粒子のなかで、特定の磁性微粒子を空間中に非接触把持できたことである。さらに図 3-14 に見られるように、対象とした磁性微粒子以外の磁性微粒子については、形状や体積が異なる場合、作用する磁気力や周囲の流体や重力の影響によって一様に把持されなかったことから選択的に磁性微粒子を非接触磁気駆動可能であることである。

本章では、前後方向には電磁石は設置せず、上下左右のみに設置した電磁石で発生させる磁気力を重力や浮力、流体抵抗などバランスさせるように位置制御して非接触磁気把持を行った。定値制御に移行する前に、磁気力に応答するか否かを確認するために、上側の電磁石で上下方向に非接触磁気駆動をさせているが、これによってセル内に含まれる対象とする以外の磁性微粒子群も上方の磁極に吸引され、初期の流れとしては、セル中心では上方の流れが生じ、セル壁面付近では下方の流れが生じる傾向であった。万が一、速やかに非接触磁気把持ができない場合、周囲粒子のクラスタ化や磁極への吸引によって流体セル内の流れが上下左右、前後成分を持った乱れた流れとなる。本手法では、高速画像処理と必要最小限の磁気力で速やかに定値制御に移行させているため、前後方向の制御なしでも選択的な非接触磁気把持と作用力評価を行うことが可能であった。また、本手法では 1 台のカメラによって粒子画像を取得しており、粒子の断面積しか得ることができない。そのため、磁性微粒子に作用する力の評価にあたっては、粒子形状を円柱と近似し体積を算出し用いた。将来的には、磁気力の正確な絶対値が必要な場合は、球形の磁性微粒子を使ってキャリブレーションを行うことが望まれる。以降では円柱と近似した粒子体積と前節で得られた結果とから、磁性微粒子に作用している力について考察する。

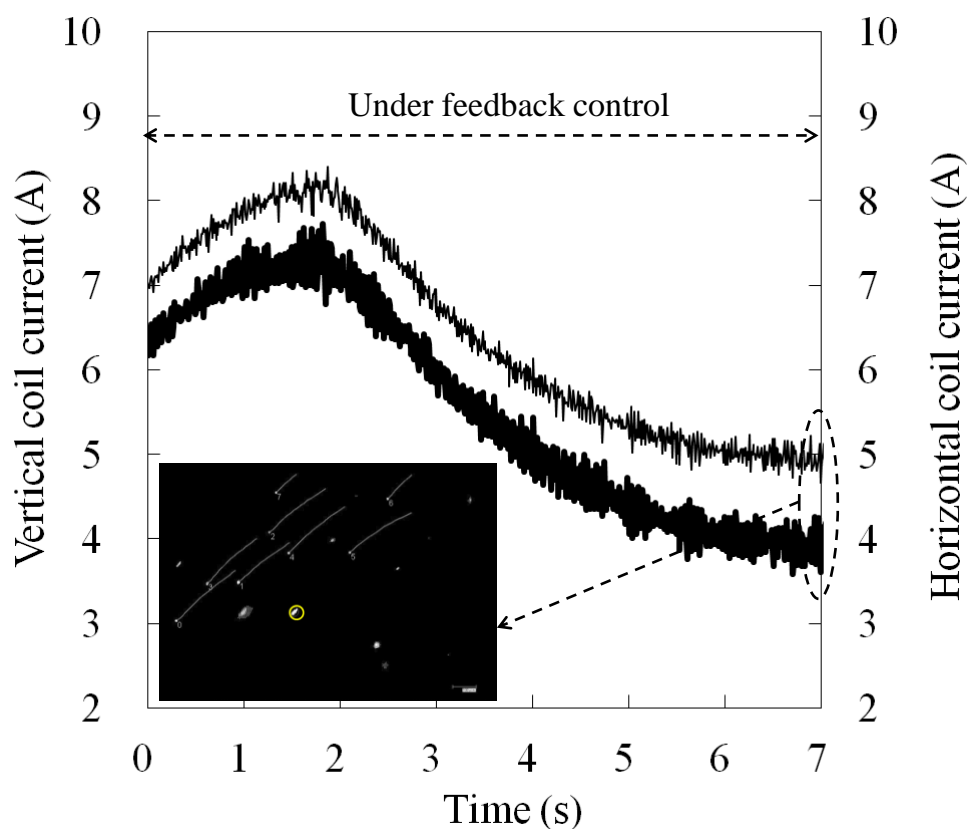


図 3-15 非接触磁気把持中の水平、垂直方向電磁石の制御電流変化。非接触磁気把持中、周囲流体の速度変化が生じたことによって磁性微粒子に作用する流体抵抗力が変化。非接触磁気把持の目標地点に維持させ続けるために流体抵抗力変化に応答して制御電流(磁気力)を増減させている。

前述した式 3-3、式 2-4～2-5 と図 3-13 とから磁気力と重力と浮力を算出し図 3-17 (左) に示した。定値制御へ移行する前の上下駆動では、重力と浮力の差による鉛直下向きの 50 pN が作用する状況において、鉛直上向きに 10 – 88 pN の矩形波状の磁気力を作用させて約 20  $\mu\text{m}$  の変位が生じていた。図 3-17 (右) には非接触磁気把持されている状態である 20 s 時点において、磁性微粒子に作用している主な力をベクトル表示した。なお、流体抵抗力については粒子が静止している状態であることから重力と浮力と磁気力とのベクトル和から算出し示した。この時点では二つの粒子が結合していることから、重力と浮力の差は鉛直下向きに 98 pN、磁気力は左上方向に 171 pN 作用しており、その他の主な力と考えられる流体抵抗力は右下方向に 90 pN 作用しており、周囲は右下方向の流れが生じていたことが示唆される。

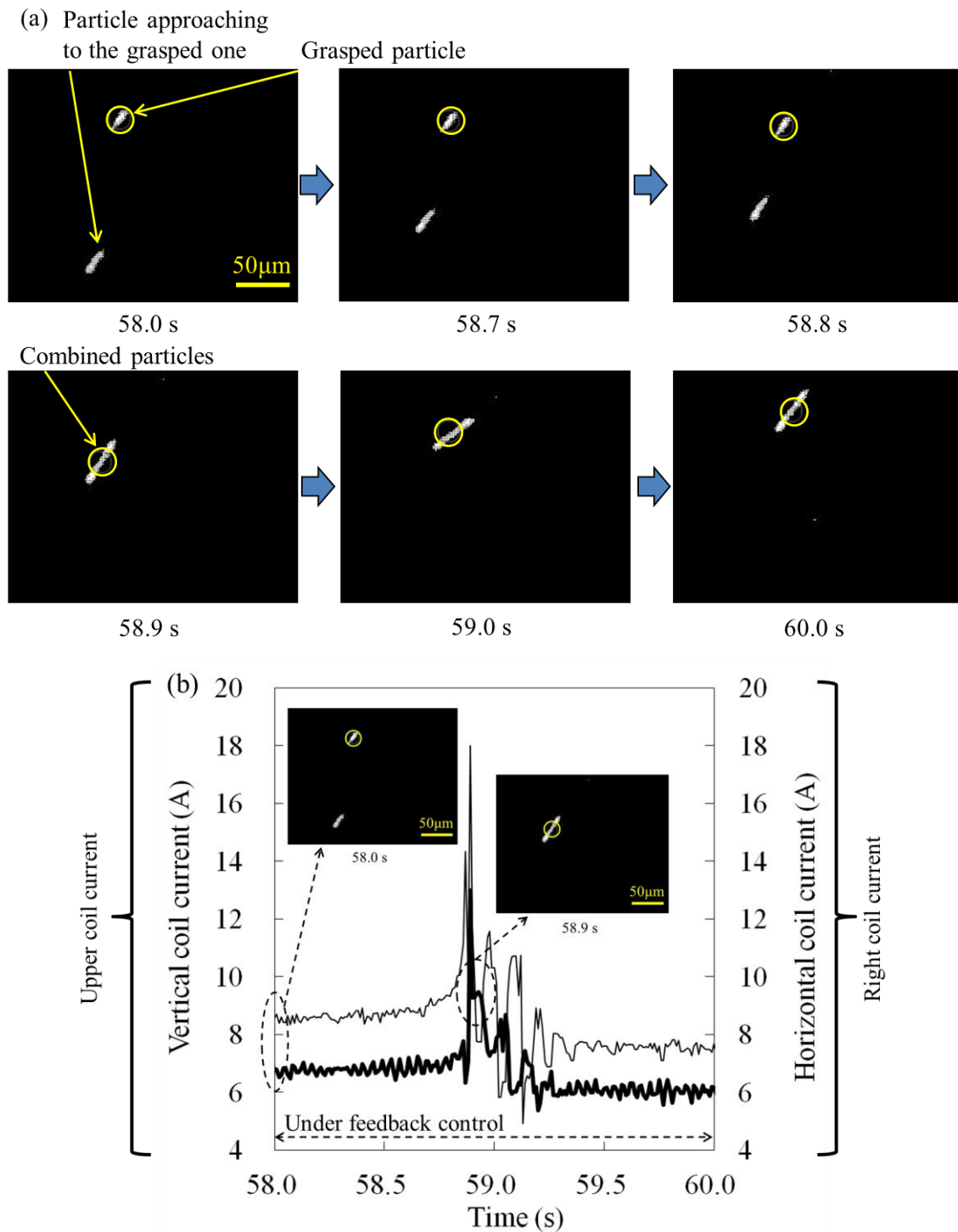


図 3-16 粒子結合時の粒子画像(a)、及び水平、垂直方向電磁石の制御電流変化(b)。  
非接触磁気把持中の磁性微粒子に下方から他の磁性微粒子が近接。非接触磁気把持されている磁性微粒子は把持される位置が変化しないように制御電流(磁気力)を増加させている。58.9 s で二つの磁性微粒子の粒子間力が制御電流の上限値を超えたため近接粒子に引き寄せられるように結合。



同様に図 3-18 には、図 3-15 の結果から主な作用力の時間変化を算出し示した。このケースにおいても、周囲の粒子との相対的な距離や動きから近接磁性微粒子の作る磁界による粒子間磁気力の影響は小さく、外部磁界による磁気力や重力、浮力以外の主な作用力は流体抵抗力和見なし図示した。これより、0–2 s において非接触磁気把持の対象である磁性微粒子に作用する力は把持するための磁気力を除くと最大で約 880 pN の流体抵抗力が支配的に作用していたことがわかった。図 3-14 から非接触把持対象以外の流速測定用の微粒子は周囲の流れにのって画面右上から左下の方向に流れていたことが示されている。これら 8 つの微粒子の粒子径は最大でも約 9  $\mu\text{m}$  以下であり、磁性微粒子であったとしても外部磁界による磁気力は、制御対象の磁気力の 1/40 倍以下となり、主に流体抵抗力によって周囲の流体の流れにのって動いていたと考えられる。図 3-15 から 8 つの粒子が最大流速を示している約 2 s 時点における平均速度は約 180  $\mu\text{m/s}$  であり、体積が等価な球形（粒子径 25.5  $\mu\text{m}$ ）と仮定した場合の粒子に作用する流体抵抗力は式 2-3 から 43 pN となり過少評価となる。このように、粒子の形状に依存するために見積もりが難しい流体抵抗力も本研究で示した非接触の作用力評価方法を用いることによって計測することが可能となった。

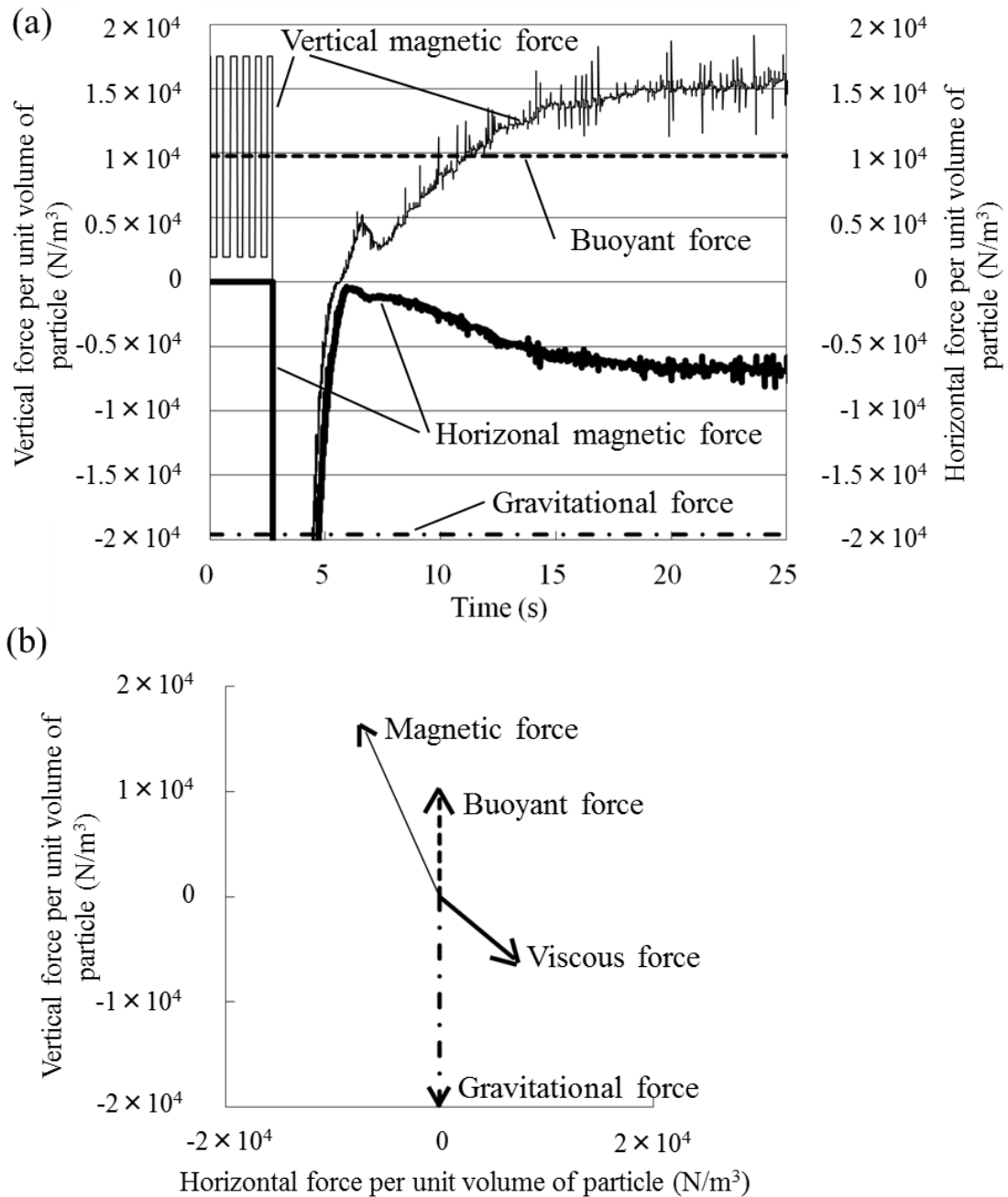


図 3-17 非接触磁気把持に至る間の磁性微粒子に作用する水平、垂直方向の力の時間変化(a)、及び 20 s 時点における磁性微粒子に作用する力のベクトル図(b)。磁性微粒子に作用する磁気力、重力、浮力以外の力を“Other forces: その他の力”とする。この場合、近接している他の磁性微粒子が存在していないため、“その他の力”は流体抵抗力と考えられる。

次に図 3-16（右）で示したように、非接触磁気把持の制御中に近接してきた他の磁性微粒子との粒子結合時の作用力評価を行った。図 3-19 には、図 3-16（右）をもとに非接触磁気把持中の磁性微粒子（Particle No.1）と近接中の磁性微粒子（Particle No.2）、及び結合した磁性微粒子（Combined Particle）の図心の時間変化を示した。また、図 3-20 には、図 3-16（右）の結果をもとに重力と浮力、外部磁界による磁気力を示し、図 3-13 と同様にその他の作用力をベクトル和から算出し示した。図 3-19 と図 3-20 において、グラフ中の 1 – 2 までの時間帯では磁気力に急激な変化は見られないことから、近接する磁性微粒子が作る磁界による粒子間磁気力の影響は少なく、その他の力としては流体抵抗（624 pN、図中矢印 0、58.0 s 時）が支配的と考えられる。同様に、結合後に安定状態に戻った 59.4 s 時点でも、その他の力は流体抵抗（1367 pN）が支配的と考えられる。結合前後の流体抵抗の増加は周囲流体の流速変化というより、粒子結合によって粒子体積と形状が変化したことによると考えられる。他方、粒子結合直前の 100  $\mu$ s（図中矢印 2 – 3）の時間帯では、近接してくる粒子が急速に移動することによって周囲流体の流速が変動したとしても、下流側から近接してくることを考慮すると、矢印 2 から 3 にかけての磁気力の増加は少なくとも近接粒子が作る磁界による粒子間力が支配的に影響していると考えられる。粒子結合前に非接触磁気把持されていた磁性微粒子の粒子径は約 23  $\mu$ m、近接してきた磁性微粒子の粒子径は約 25  $\mu$ m であった。粒子間距離が約 186  $\mu$ m になった矢印 2 から非接触磁気把持されている磁性微粒子に作用する力は約 744 pN（58.79 s 時）から顕著に増加しはじめ、70 ms 後には約 1367 pN に達し、その後外部磁界による磁気力（垂直方向）の上限を超えたため非接触磁気把持中の磁性微粒子も矢印 3 まで吸引され、粒子結合に至った。粒子結合から約 500 ms 後の矢印 4（59.4 s 時）で、結合した磁性微粒子を対象として非接触磁気把持されており、ほぼ安定状態となった。

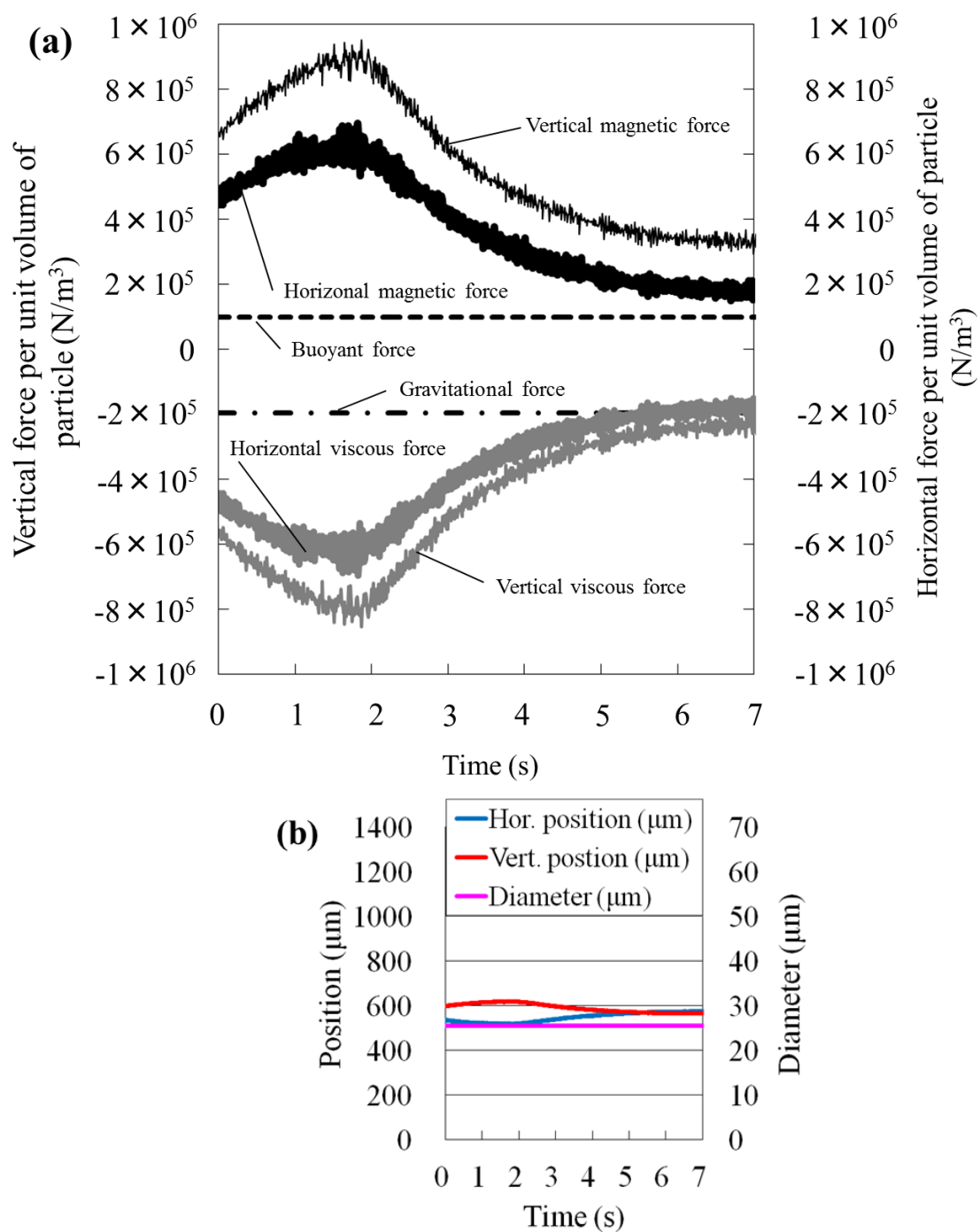


図 3-18 非接触磁気把持中の粒子に作用する水平／垂直方向の力の時間変化(a)、及び粒子の水平／垂直位置と粒子径の時間変化(b)。非接触磁気把持中、周囲流体の速度変化が生じたことによって磁性微粒子に作用する流体抵抗力が変化。非接触磁気把持の目標地点に維持させ続けるために流体抵抗力変化にตอบสนองして磁気力を増減させている。

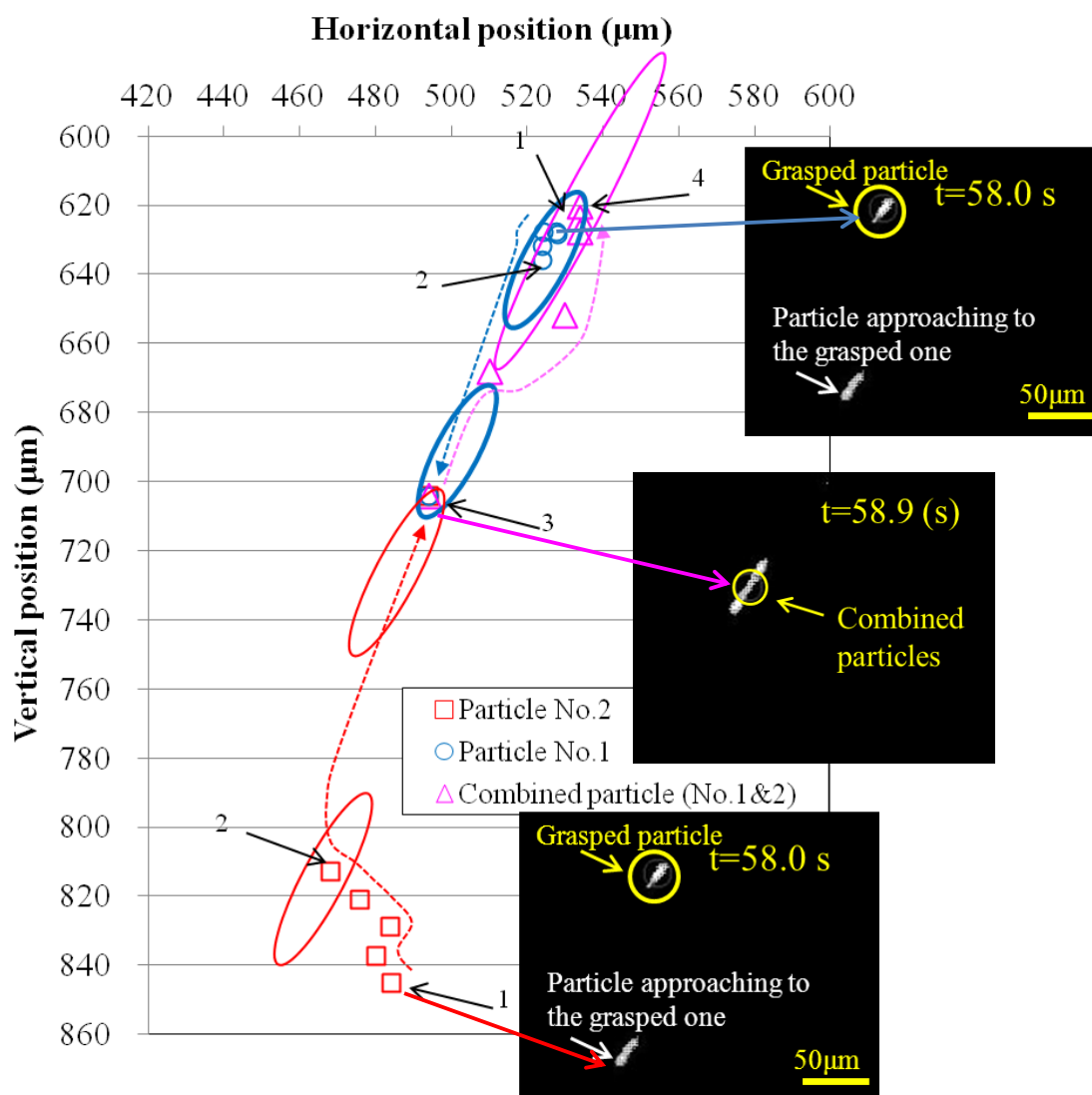


図 3-19 粒子結合時の非接触磁気把持対象粒子と近接粒子の位置変化。1の地点では非接触磁気把持されている粒子(No.1)と近接粒子(No.2)はお互いに粒子間力を及ぼしあっていない。1-2の間で粒子間力が増加し、2の地点で非接触磁気把持可能な磁気力の上限を超えたため、No.1とNo.2が互いを引き寄せ、3の地点で粒子結合に至っている。その後、ひと塊の粒子として再び非接触磁気把持制御により把持目標の地点4に誘導され安定的に把持。

ここで、粒子径が  $23\text{ }\mu\text{m}$  の球形の磁性微粒子二つを対象として、式 3-3 と式 3-4 を用いた粒子結合時の近接粒子が作る磁界による粒子間磁気力の評価を行った。矢印 1 における粒子間距離は図 3-19 から  $222\text{ }\mu\text{m}$  であるので、接近中の磁性微粒子が非接触磁気把持されている磁性微粒子付近に作る磁界から、これによる粒子間磁気力を算出すると  $114\text{ pN}$  となる。

同様に、矢印 2 における粒子間距離は  $186\ \mu\text{m}$  であるので、粒子間磁気力は  $249\ \text{pN}$  となり約  $135\ \text{pN}$  の増加となる。一方、図 3-20 による矢印 1 における外部磁界による磁気力は  $633\ \text{pN}$  に対して、矢印 2 における磁気力は  $744\ \text{pN}$  であり、約  $111\ \text{pN}$  の増加であった。理論的な検討と実験的な検討のいずれにおいても、粒子間距離に応じて粒子間力が増加する結果となっており両者の傾向が一致することが確認できた。

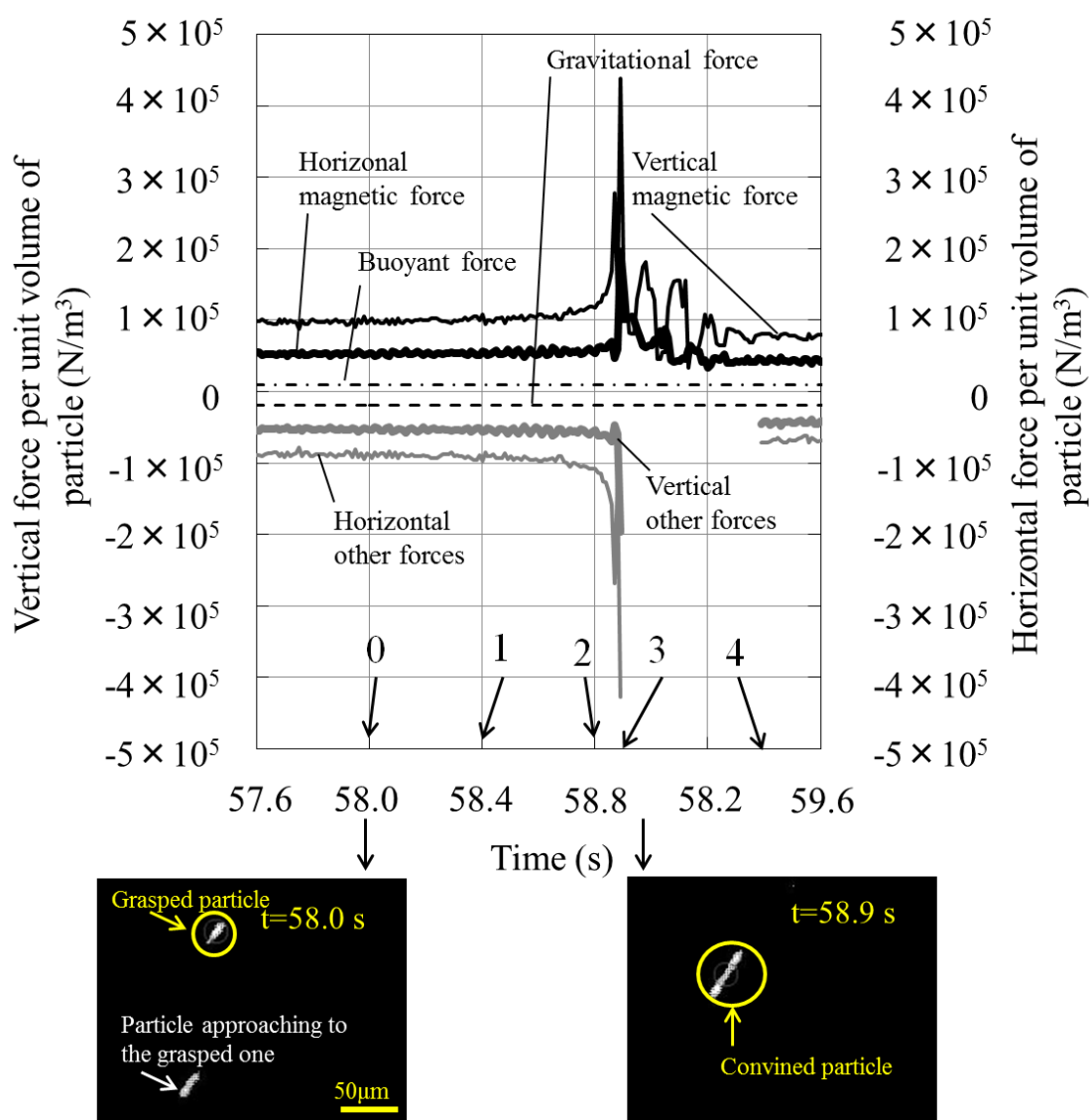


図 3-20 粒子結合時に粒子に作用する水平、垂直方向の力。“Other force: その他の力”は、非接触磁気把持粒子と近接粒子との位置関係により、流体抵抗力和粒子間力の両方が含まれる。

### 3.3 非接触磁気操作に向けた流速制御可能な流体セル中における作用力評価

実用的なレベルにて体系的に磁性微粒子の挙動を理解するためには、サイズとしてはナノからマイクロオーダー、磁気特性としては弱い磁化を持つ磁性微粒子（例えばナノ磁性微粒子など）から強磁性微粒子を対象として研究を行うことが必要である。また、このような磁性微粒子の磁化が、外部からの磁界の大きさに応じて未飽和状態から飽和状態に遷移することも考慮に入れる必要がある。さらに、研究を行う方法としては、前節までに示したような実験的な方法によるものと、数値解析による理論的な方法とが考えられる。

以降では、前節までに構築した磁気駆動用の常伝導電磁石が発生可能な磁気力の制約から、サイズとしてはマイクロオーダーのみを、磁気特性としては強磁性体の未飽和状態のみを対象とする。実験的な手法として、作用力評価手法を用いて、磁気駆動用電磁石によって発生させた磁界のもとで流体中磁性微粒子に作用する力の体系的な評価を行う。

#### 3.3.1 流速制御可能な流体セル中における磁性微粒子駆動装置

##### 3.3.1.1 流体セル中の流速制御方法

第2章～第3章3節にかけての試験では、ガラスセル中に純水と磁性微粒子とを封入した状態で磁性微粒子挙動の可視化や作用力評価が可能であることを実証した。本節では溶媒の流速（流体抵抗力）を増減可能とすることでより定量的に作用力を評価可能とする。はじめに流体セルに連結した流路中に流量調節可能ポンプを設置し、流体セル中の流速制御を行う方法について検討した。

図 3-21 に改造した流速制御可能な磁性微粒子駆動装置を示す。石英ガラスセル（5 mm × 5 mm × 45 mm）の上下面に入出ノズルを設け、シリコンチューブを介してポンプに接続した。また、ポンプへの供給用とポンプからの戻り用の溶媒と磁性微粒子は、ガラスビーカーに溜めておく事とし、供給前に沈降や凝集が生じないように超音波洗浄機の浴槽内にビーカーを設置した。

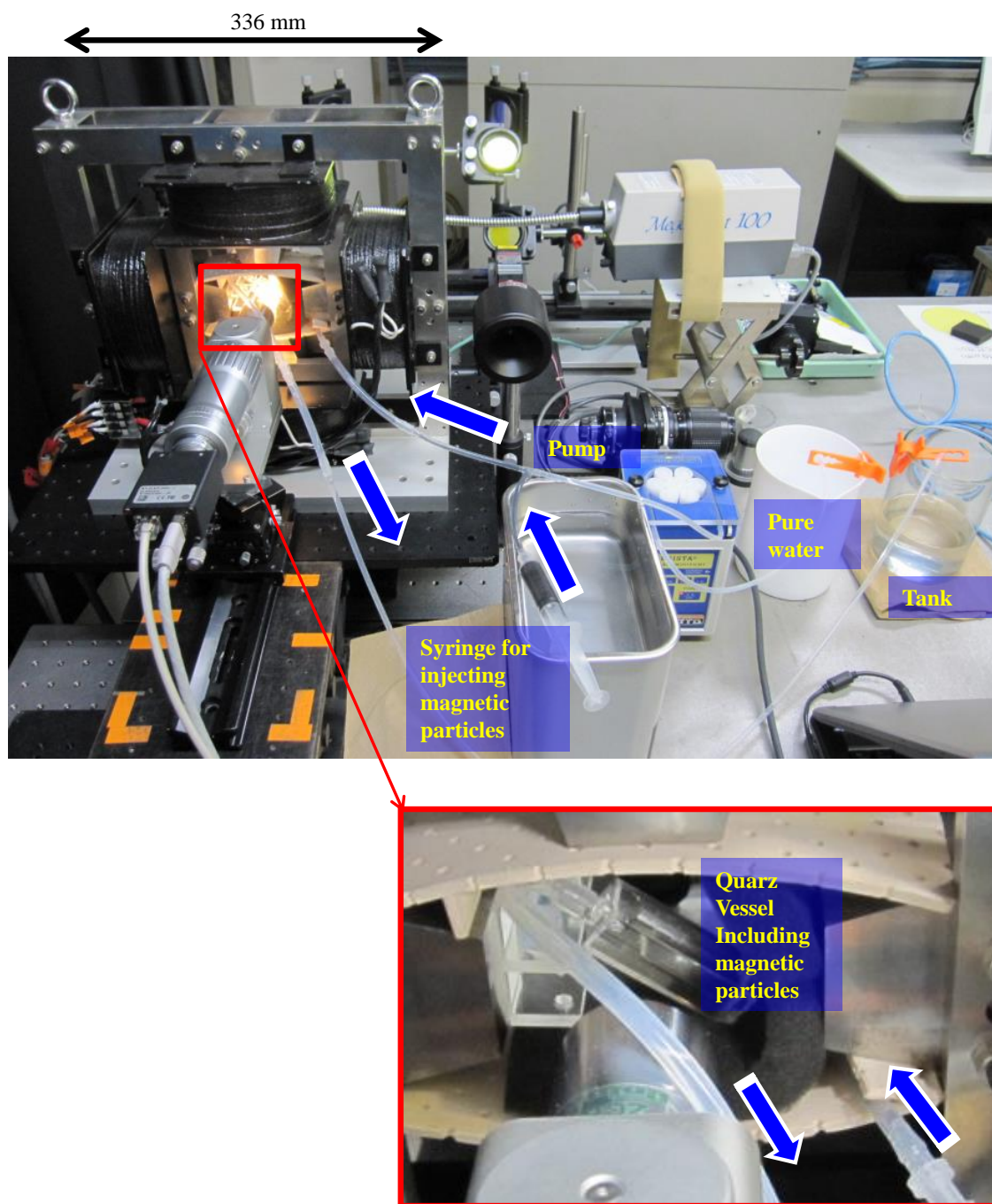


図 3-21 流速制御可能な磁性微粒子駆動装置。磁性微粒子含有の純水を、ポンプを介して流体セル中に連続的に供給。

なお、用いたポンプは 1000 段階の速度調節を速度調整メモリで行うため、速度調整メモリと流体セル内の粒子との速度の関係を粒子トラッキング実験によってあらかじめ確認した。所定の速度調整メモリで流れを作り、可視化装置で取得された画面内の異なる 3 つの微小粒子の速度を粒子トラッキングにより計算した。これを、速度調整メモリが 25, 50, 100,



200 の 4 段階で各段階 3 回ずつ粒子速度計測を行った。

### 3.3.1.2 流体セル中の流速制御試験結果

前項の流速制御試験方法に従って得られた速度調整メモリと粒子速度との関係を表すグラフを図 3-22 に示した。両者の間には良好な比例関係が見られている。計測対象とした微粒子は直径 10  $\mu\text{m}$  前後のものであった。図 3-23 に示されているように粒子直径と粒子速度との間に明確な増減関係が見られないため、粒子速度を流体速度と見なすことができるものとする。

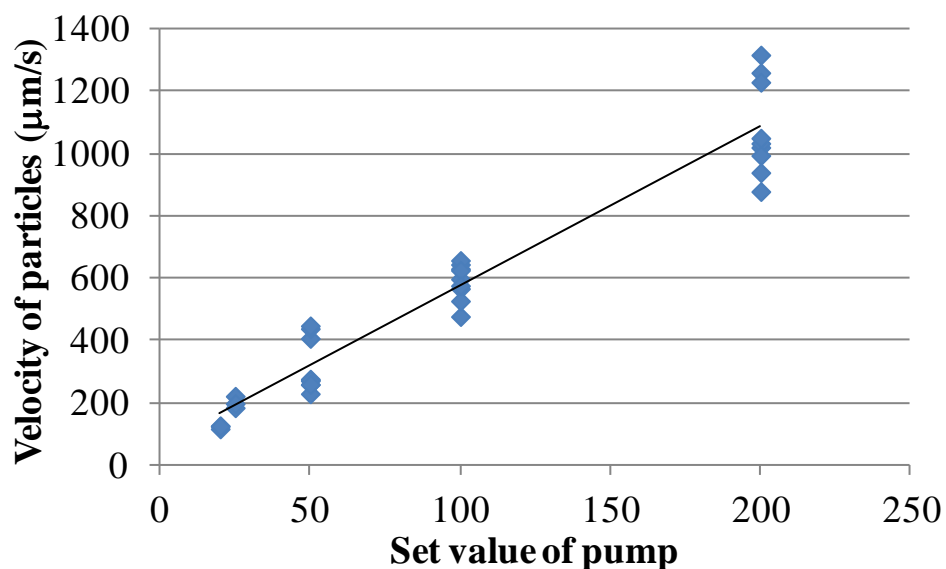


図 3-22 ポンプの速度設定値と粒子速度との関係。配管の圧損を加味した流体セル中の粒子速度を把握するためにポンプの速度設定値と流体セル中の粒子速度との校正曲線を取得（無磁界下にて計測）。ポンプ速度設定値と粒子速度の間には比例関係があり、ポンプ速度設定値 200 で流体セル中の粒子速度は約 1000  $\mu\text{m/s}$ 。

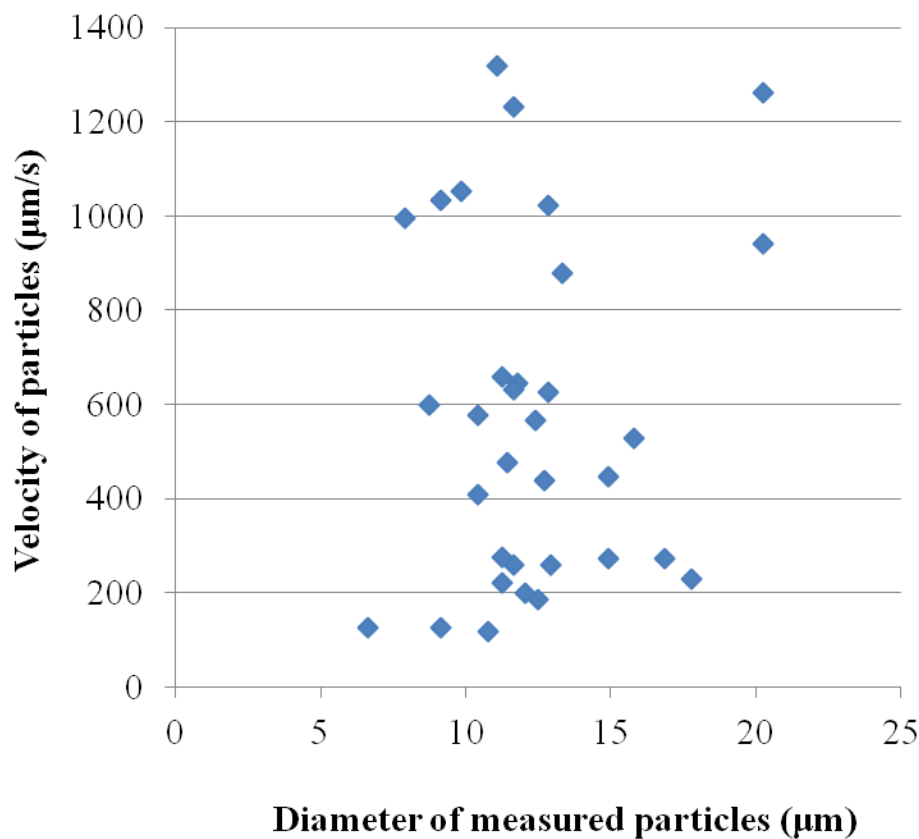


図 3-23 粒子速度校正用に流速計測した粒子の平均直径と粒子速度との関係。粒子速度校正用に流速計測した粒子の粒子径と粒子速度に比例関係が見られないことから、粒子の重力の影響を受けずに粒子速度(≒流体速度)を計測できたことを表している。

### 3.3.2 磁性微粒子に作用する力のリアルタイム評価方法

流速制御可能な流体セル中の磁性微粒子を対象として、後述するように条件をかえて磁性微粒子に作用する力の計測を行い、電磁石によって発生させる磁界及び磁気勾配と種々の作用力との相関関係を定量的に調べる。変化させる値は、溶媒の流速、溶媒の粘度、粒子径（把持粒子と近接粒子）、粒子間距離、磁束密度（磁気勾配）である。

3.2 節で示した手法のように、諸条件下における把持粒子に作用する重力、浮力、流体抵抗力、近接粒子が発生する磁界によって把持粒子に作用する粒子間磁気力の時間変化をそれぞれ計測する。

ここで、溶媒の流速は約 0 – 500  $\mu\text{m/s}$ 、溶媒の粘度は約 1, 2.25, 4.5 Pa·s、粒子径は約 10 – 50  $\mu\text{m}$ 、粒子間距離は約 0 – 60  $\mu\text{m}$ 、磁束密度は約 0 – 0.1 T（磁気勾配は 0 – 4 T/m）とした。

なお、粘度  $4.5 \text{ Pa}\cdot\text{s}$  とは、人の血液の粘度に相当する値でありグリセリンを純水中に混合し調整した。また、用いている磁性微粒子が飽和しはじめる磁束密度が  $0.1 \text{ T}$  であり、今回の試験条件では磁性微粒子は未飽和領域にあると考えられる。

重力と浮力、については、それぞれ式 2-4, 2-5 を用いて算出した。なお、粒子径は 3.2.4 項で述べたように一方向のカメラから撮影した投影面積から円柱状の粒子形状を想定し等価的な球の直径を算出し、粒子径とした。また、非接触磁気把持されている磁性微粒子に作用している磁気力は、計測値である各コイル電流と等価的な直径と式 3-3 とから算出される。

流体抵抗力は 3.2 節で示したように、周囲に把持されている磁性微粒子以外に近接する磁性微粒子が存在していない状態におけるその他の力として図 3-17（右）に示したベクトル演算により算出する。次に、より詳細に近接する磁性微粒子が発生する磁界によって把持粒子に作用する粒子間磁気力を評価するために、3.2 節で示した方法をもとに改訂した算出方法について以下に述べる。

図 3-24～3-25 に近接粒子が発生する磁界による粒子間磁気力の算出課程を示した。

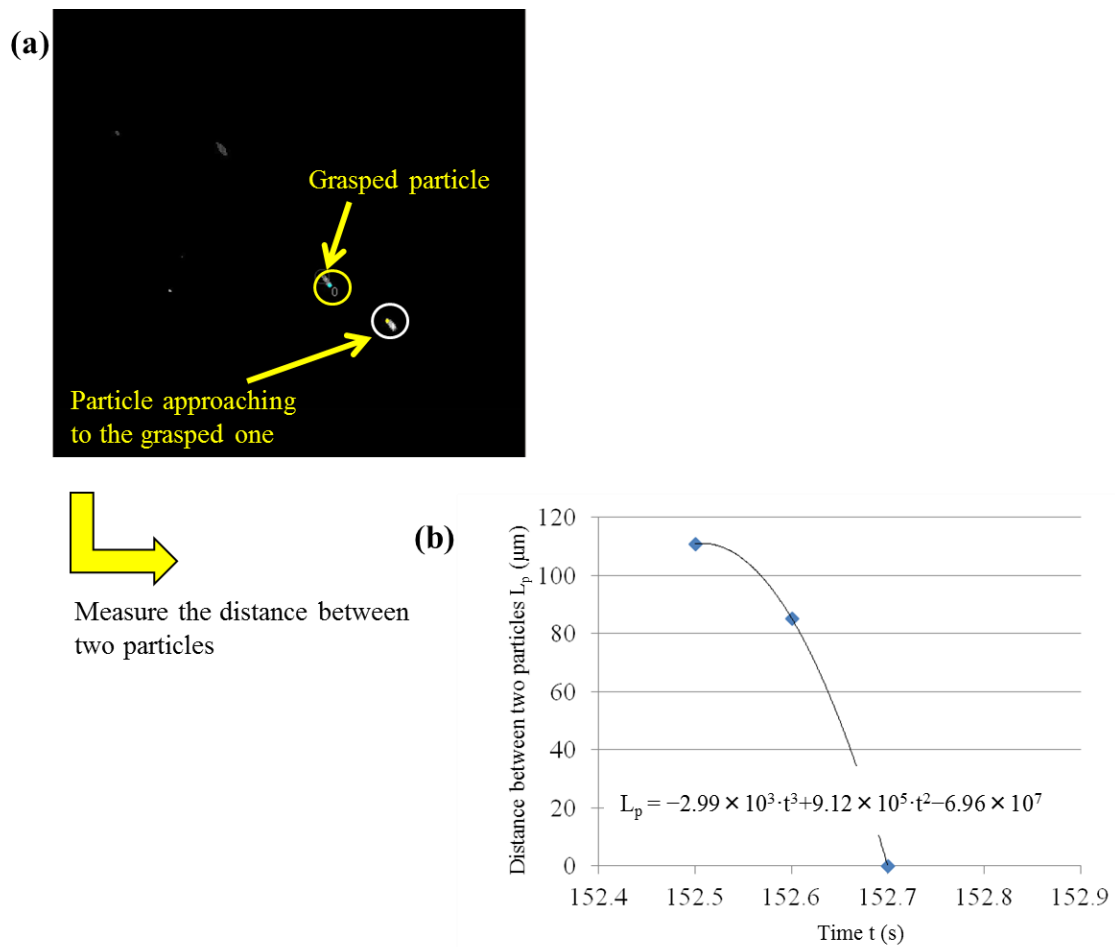


図 3-24(a)～(b) 近接する二つの粒子間距離の時間変化。100 ms 間隔で取得した画像 (a)から粒子間距離の時間変化(b)を画像処理によって計測し、近似曲線式を求める。この式は、後ほど図 3-25 で 10 ms 間隔の粒子間距離を内挿するために用いる。

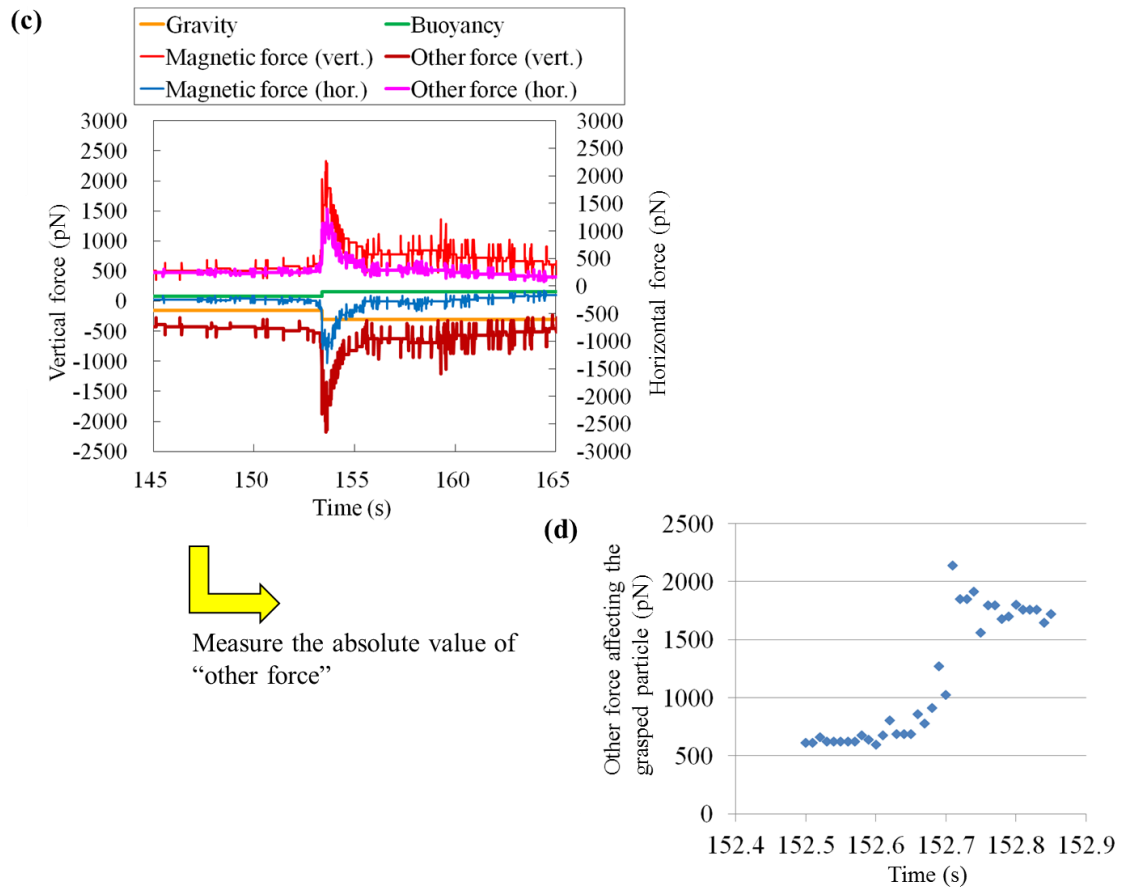


図 3-24(c)～(d) 近接粒子が存在する条件下における把持粒子に作用している“その他の力”の時間変化。“その他の力”の水平成分と垂直成分から 10 ms ごとの“その他の力”の絶対値の時間変化を算出する。図 3-24(d)は、後ほど図 3-25(d)で用いる。

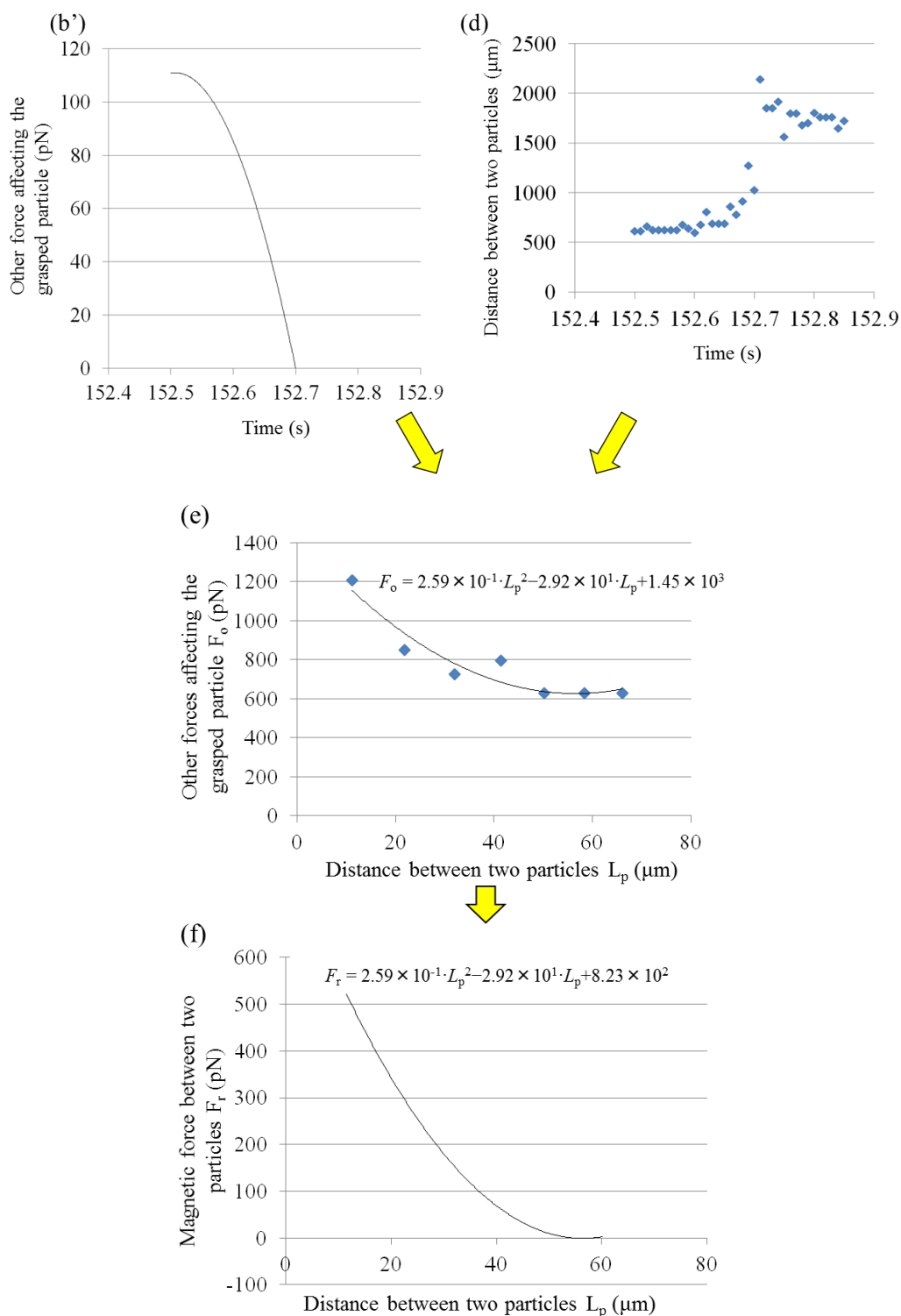


図 3-25 粒子間磁気力と流体抵抗力とを分離する。(b')と(d)から粒子結合直前の“その他の力”と粒子間距離の関係式を算出する。この場合粒子間距離が 60  $\mu\text{m}$  以上では“その他の力”に変化がなくなるため、60  $\mu\text{m}$  時点の“その他の力”を差し引いた 60  $\mu\text{m}$  以内での変化量は粒子間力に相当する(f)。

100 ms 間隔で取得した粒子結合時の連続画像 (a) から粒子間距離の時間変化 (b) を画像処理により算出する。ここで、横軸は時間、縦軸は把持粒子と近接粒子との表面間距離を表す。一方で、把持されている磁性微粒子に作用する力 (c) は 10 ms 間隔で記録されているため、(b) で求めた 100 ms 間隔の粒子間距離の時間変化をもとに近似曲線を算出し 10 ms 間隔の粒子間距離を内挿によって取得し、把持されている磁性微粒子に作用する「その他の力」と粒子間距離との相関関係を (e) のように求める。ここで、(b) の縦軸と (e) の横軸は把持粒子と近接粒子との表面間距離を表す。(e) において、把持粒子に作用する「その他の力」の時間変動がない距離では、まだ粒子間磁気力がきわめて小さく全てが流体抵抗力と見なすことができる。粒子間距離が  $40\ \mu\text{m}$  以下になると、顕著に「その他の力」が増加し始めており、 $0-50\ \mu\text{m}$  の「その他の力」から  $50\ \mu\text{m}$  以上の距離の時の「その他の力」を差し引きした値が粒子間磁気力に相当する。このようにして、結合直前の粒子間距離に対する近接粒子の磁界による粒子間磁気力変化 (f) を算出した。

### 3.3.3 磁性微粒子に作用する力のリアルタイム評価結果

#### 3.3.3.1 流体抵抗力が支配的な場合

把持粒子近傍に近接する磁性微粒子が存在しない場合における把持粒子に作用する力の評価を行った。この場合の支配的な作用力は、磁気力、重力、浮力、流体抵抗力である。取得した把持粒子の粒子径とその時に作用している磁束密度や磁気勾配との関係を図 3-26 に示した。なお、図中、重なっている青と赤のマーカは同一粒子を表し、左側の縦軸が磁気勾配を、右側の縦軸が磁束密度である。図 3-26 より把持した磁性微粒子の粒子径は約  $10-50\ \mu\text{m}$  で  $24.4 \pm 8.3\ \mu\text{m}$  (平均 $\pm$ 標準偏差) であった。また、作用している磁束密度は約  $0.01-0.09\ \text{T}$  であり、磁化は未飽和状態であったと考えられる。

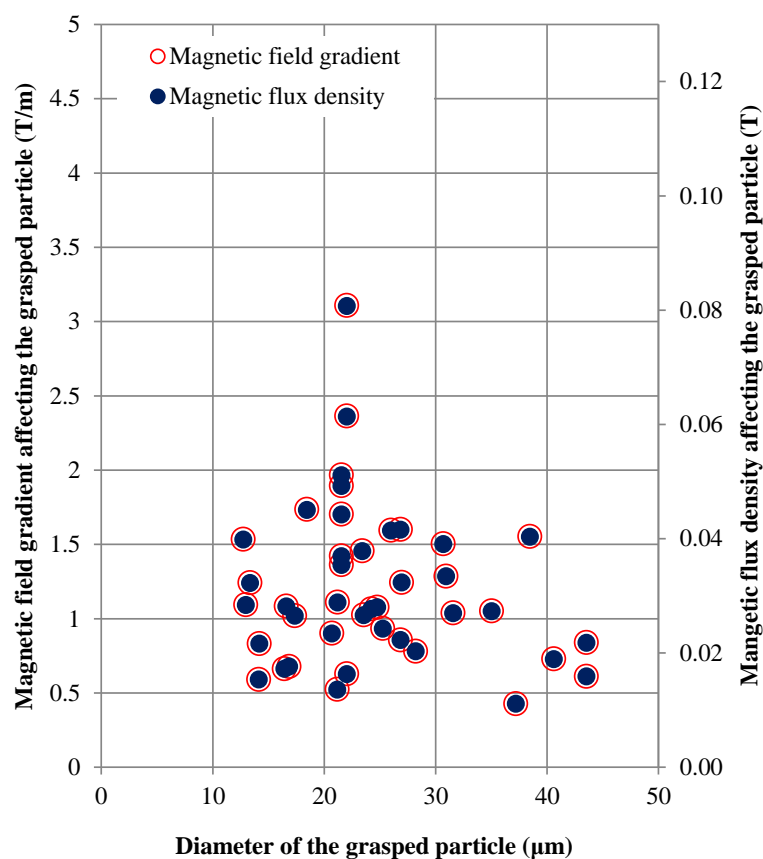


図 3-26 非接触磁気把持されている磁性微粒子の直径と把持粒子に作用している磁気勾配と磁束密度。作用力評価に用いた粒子径は平均約 24  $\mu\text{m}$  であり、作用させた磁束密度は 0.1 T 以下のため磁気未飽和の領域である。また、重なっている赤マークと青マークは同一粒子であることを表す。

図 3-27 には、流体の粘度別に取得した把持粒子の粒子径と把持粒子に作用している外部磁界による磁気力、流体抵抗、重力、浮力との関係を示した。なお、縦軸の作用力は粒子体積で正規化した値を表示している。また、各マーカで縦軸がそろっているものは同一粒子に作用する力を表している。いずれのグラフにおいても、磁気力と流体抵抗がほぼ同程度の力となっており、粒子径数十ミクロン、流速数十～数百マイクロメートル／秒の流体中では重力と比較して流体抵抗が大きな割合を占めることが示されている。



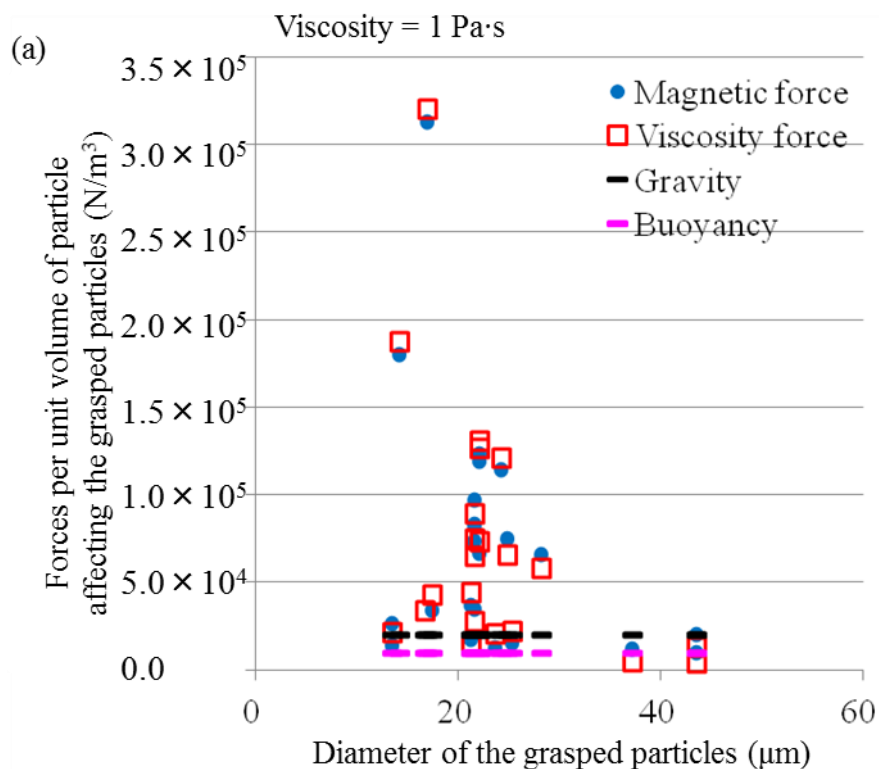


図 3-27(a) 把持粒子の粒子径と把持粒子に作用している力との関係 (粘度 1.0 Pa·s)

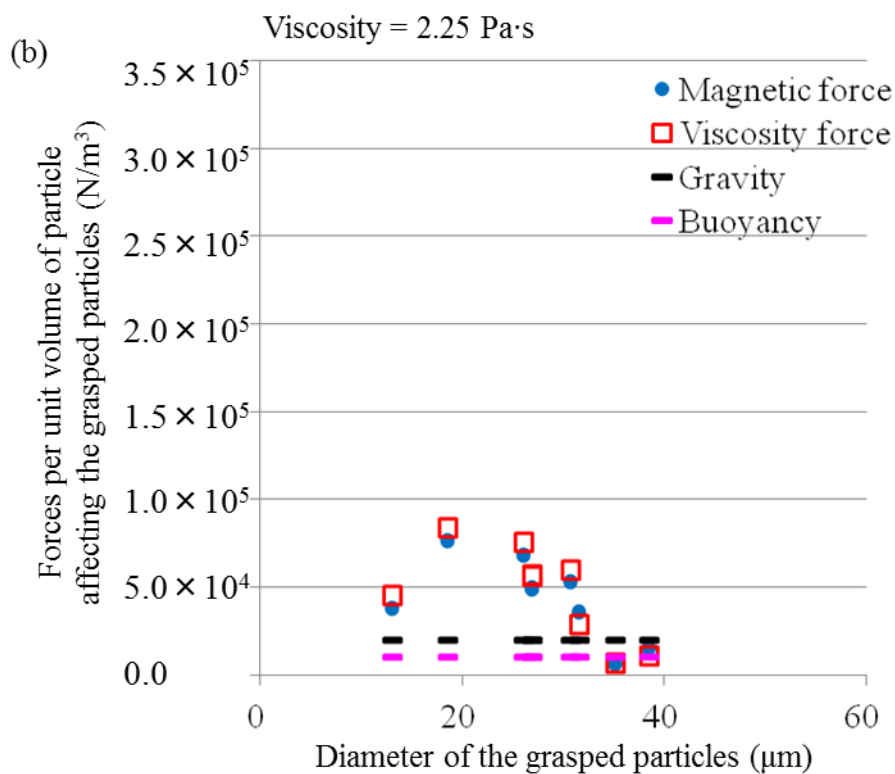


図 3-27(b) 把持粒子の粒子径と把持粒子に作用している力との関係 (粘度 2.25 Pa·s)

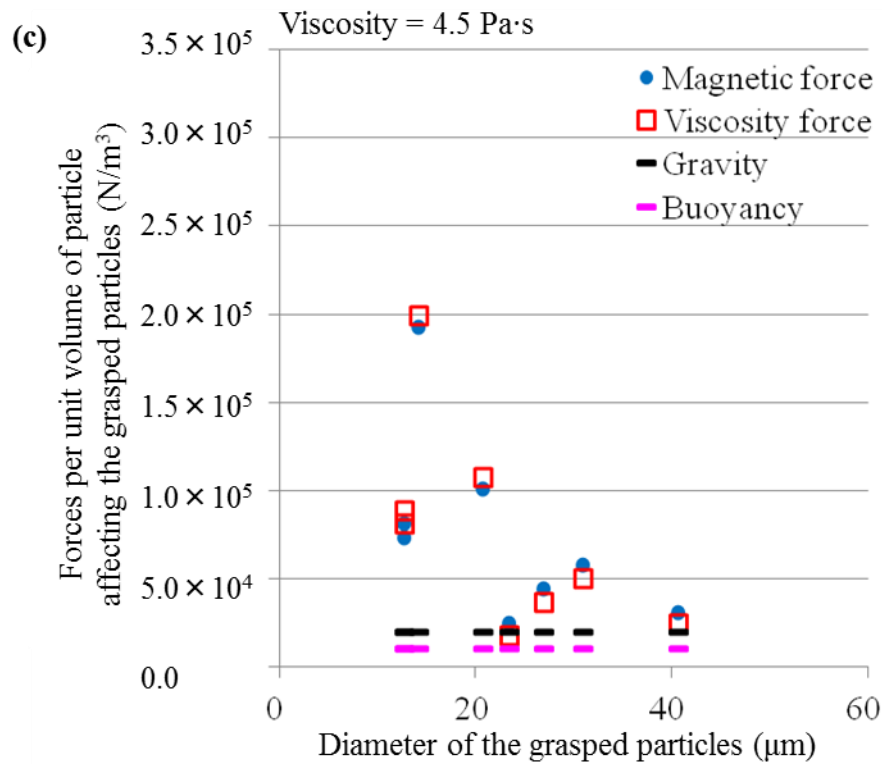


図 3-27(c) 把持粒子の粒子径と把持粒子に作用している力との関係(粘度 4.5 Pa·s)。  
 粘度による顕著な違いは見られないが、粒子径が大きいと相対的に重力と浮力の影響が大きく磁気力と流体抵抗力の影響は小さくなる傾向。

### 3.3.3.2 流体抵抗力及び粒子間磁気力が支配的な場合

把持粒子近傍に近接する磁性微粒子が存在する場合における把持粒子に作用する力の評価を行った。この場合の支配的な作用力は、磁気力、重力、浮力、流体抵抗力、及び近接粒子との粒子間磁気力である。

図 3-28、3-30、3-32 には、非接触磁気把持されている磁性微粒子と、それに近接してくる磁性微粒子の軌跡の一例を粘度別に示した。また、図 3-29、3-31、3-33 には、非接触磁気把持されている磁性微粒子に作用しているその他の力（10 ms 間隔）と、近接してくる磁性微粒子との粒子間距離（表面間距離、100 ms 間隔）の時間変化の一例を粘度別に示した。いずれの結果においても、はじめの 1 – 2 s 間は粒子間距離とその他の力との間に相関は見られず、近接粒子による粒子間磁気力の影響をほとんど受けていないことからその他の力は流体抵抗力が支配的であると考えられる。一方で、結合直前の約 100 ms 間は粒子間距離とその他の力が顕著に変化していることから、その他の力は流体抵抗力と近接粒子による粒子間磁気力との合計を表していると考えられる。今回一例として示した粒子結合は、流れに逆らって非接触磁気把持されている磁性微粒子に対して、下流側から他の磁性微粒子が近接してくるケースであり、粒子間距離が縮まるにつれて、流体抵抗力に対抗させていた外部磁界による磁気力を粒子間磁気力が補助する方向に作用するためにその他の力が減衰している。一方で、粒子結合後は再び流体抵抗力に対抗して非接触磁気把持するためにその他の力が増加している（図 3-29、3-31、3-33 の After connection 矢印部を参照）。なお、作用力の時間変化からは粘度による顕著な違いは見られなかった。

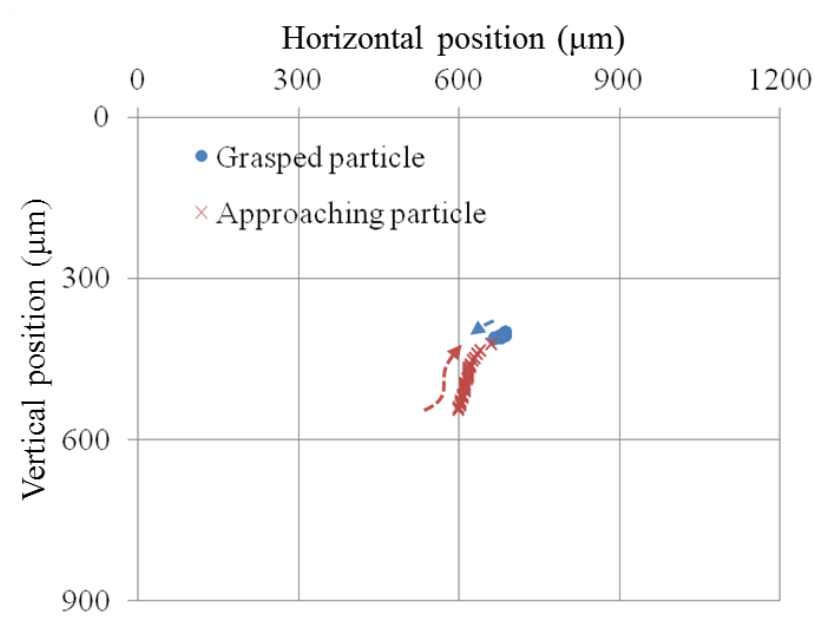


図 3-28 結合前 3 s 間の粒子位置変化、粘度は 1 Pa·s。

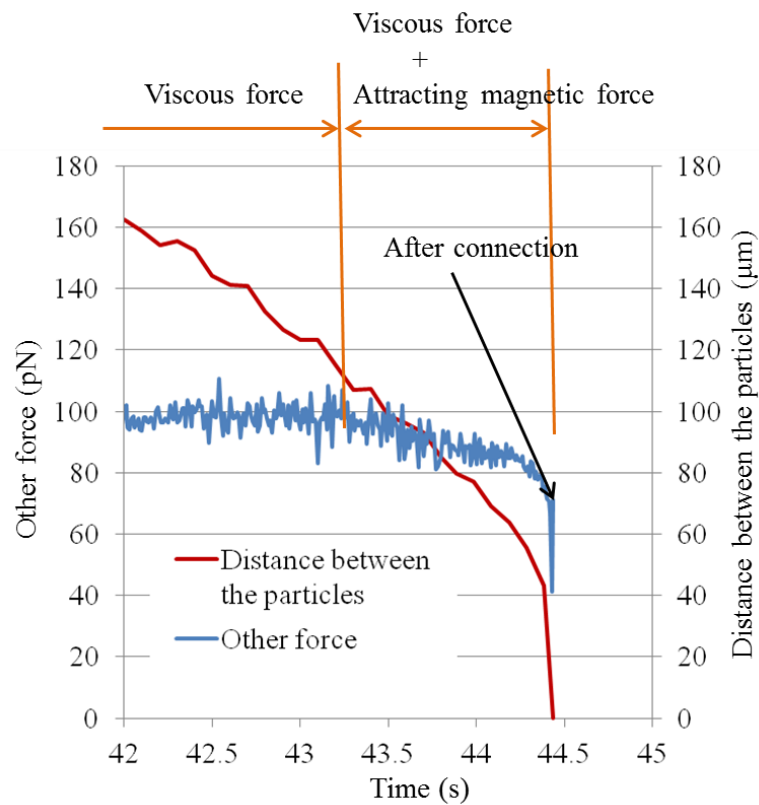


図 3-29 結合前 3 s 間の把持粒子に作用するその他の力と粒子表面間距離(右)、粘度: 1 Pa·s。流体抵抗力の作用方向に対して磁気力と粒子間磁気力が反対向きのため、結合直前は流体抵抗力と粒子間磁気力が相殺し、その他の力は減少する。なお、その他の力は 2 点の移動平均値。

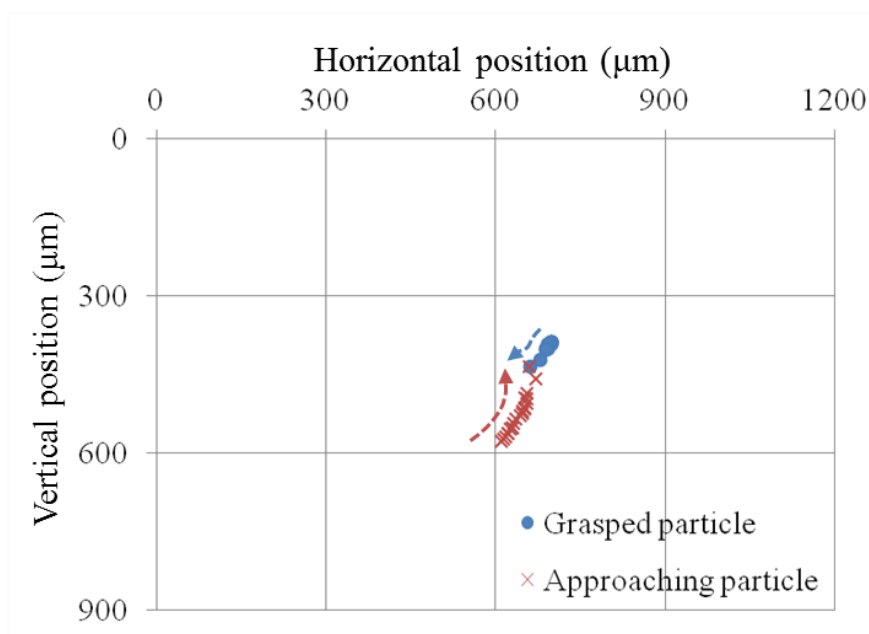


図 3-30 結合前 2 s 間の粒子位置変化、粘度は 2.25 Pa·s。

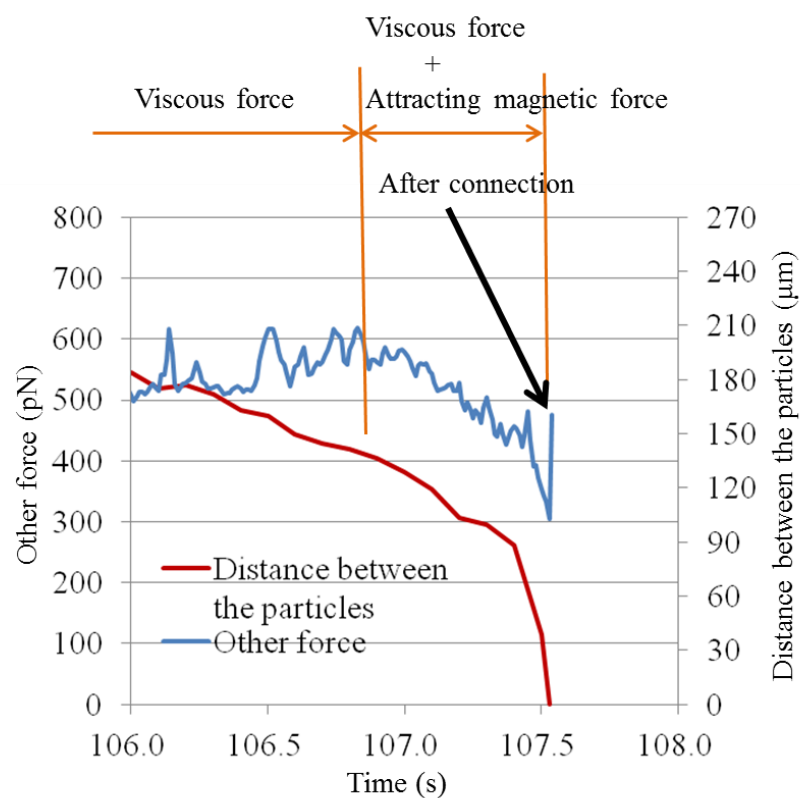


図 3-31 結合前 2 s 間の把持粒子に作用するその他の力と粒子表面間距離、粘度：2.25 Pa·s。流体抵抗力の作用方向に対して磁気力と粒子間磁気力が反対向きのため、結合直前は流体抵抗力と粒子間磁気力が相殺し、その他の力は減少する。なお、その他の力は 2 点の移動平均値。

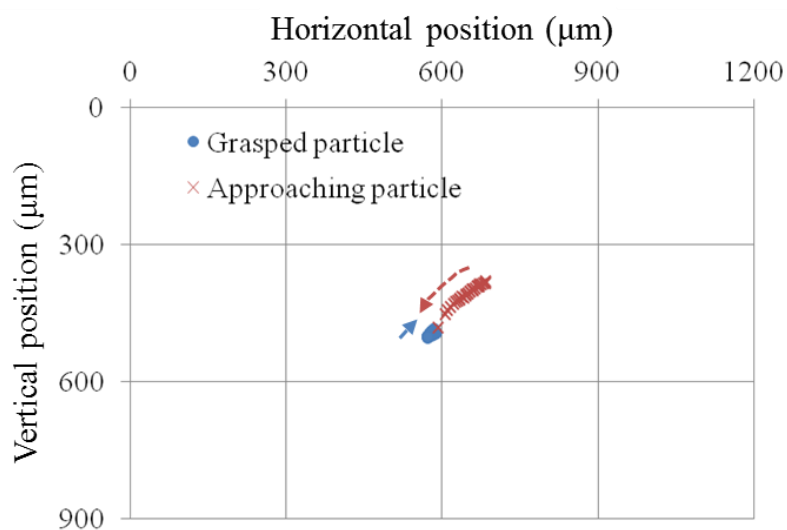


図 3-32 結合前 3 s 間の粒子位置変化、粘度は 4.5 Pa·s。

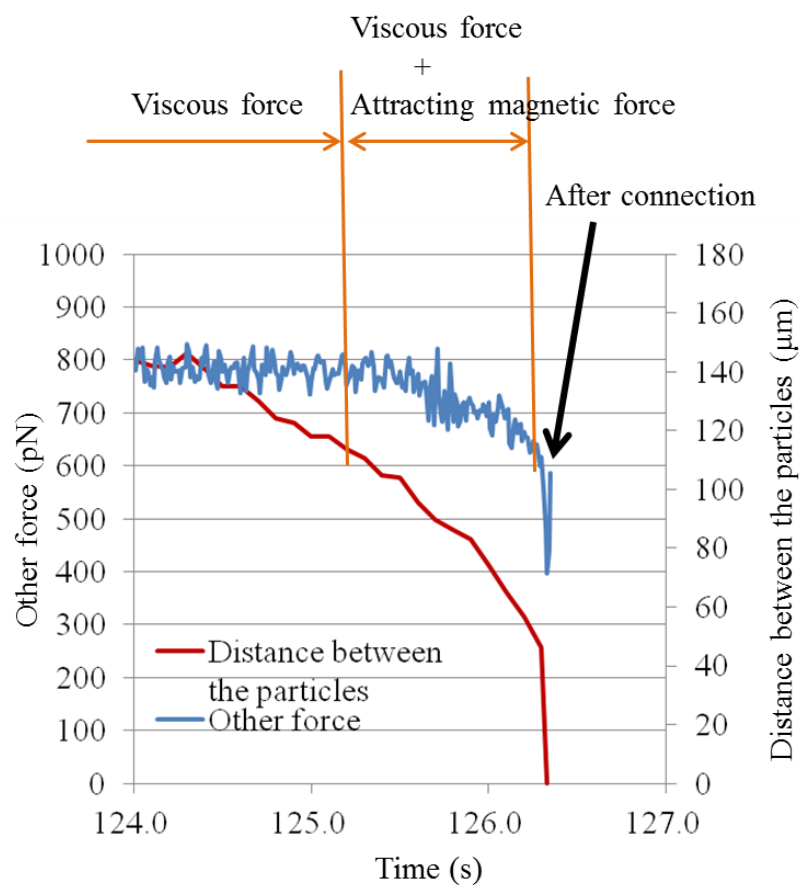


図 3-33 結合前 3 s 間の把持粒子に作用するその他の力と粒子表面間距離、粘度は 4.5 Pa·s。流体抵抗力の作用方向に対して磁気力と粒子間磁気力が反対向きのため、結合直前は流体抵抗力と粒子間磁気力が相殺し、その他の力は減少する。なお、その他の力は 2 点の移動平均値。

前述の図 3-28～3-33 のように各ケースの粒子結合試験結果を整理し、近接粒子が粒子間磁気力によって把持粒子と結合するまでの 30 ms 間に作用している平均の磁気力と流体抵抗力を算出し図 3-34 に示した。なお、横軸は把持粒子の粒子径である。縦軸の作用力はそれぞれの粒子体積で正規化された値となっている。縦軸がそろっているマーカは同一粒子に作用する磁気力と流体抵抗力を表している。また、図 3-35 には、近接粒子と把持粒子とが粒子間磁気力によって結合する直前の 10 – 30 ms 間の粒子間磁気力の大きさと粒子間距離との関係を示した。図 3-34 より把持粒子に作用する磁気力と流体抵抗力との間に差が見られるケースがあることから、近接粒子が存在する場合は、それらとの粒子間磁気力が流体抵抗力と同等あるいはそれ以上に支配的となりうることを示されている。

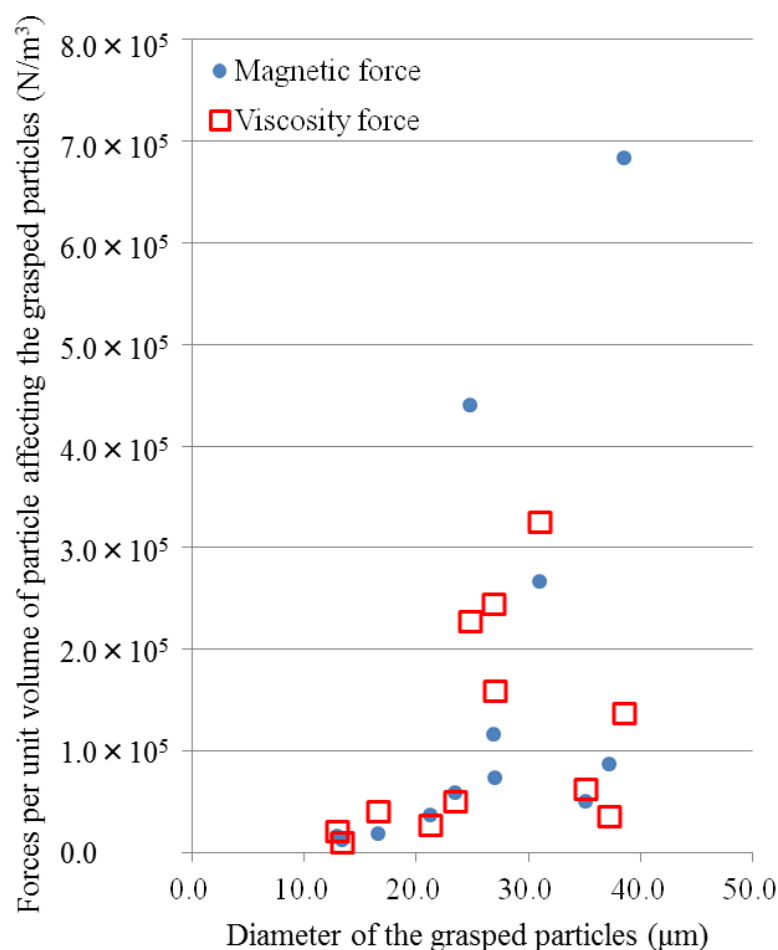


図 3-34 近接粒子が粒子間磁気力によって把持粒子と結合するまでの 10 – 30 ms 間に作用している平均の磁気力と流体抵抗力。粒子径 10 – 40 μm、流速 0 – 300 μm 中で非接触磁気駆動する場合、近接粒子による粒子間磁気力は流体抵抗力と同程度以上の大きさに達するため、流れに逆らった粒子挙動が生じる。

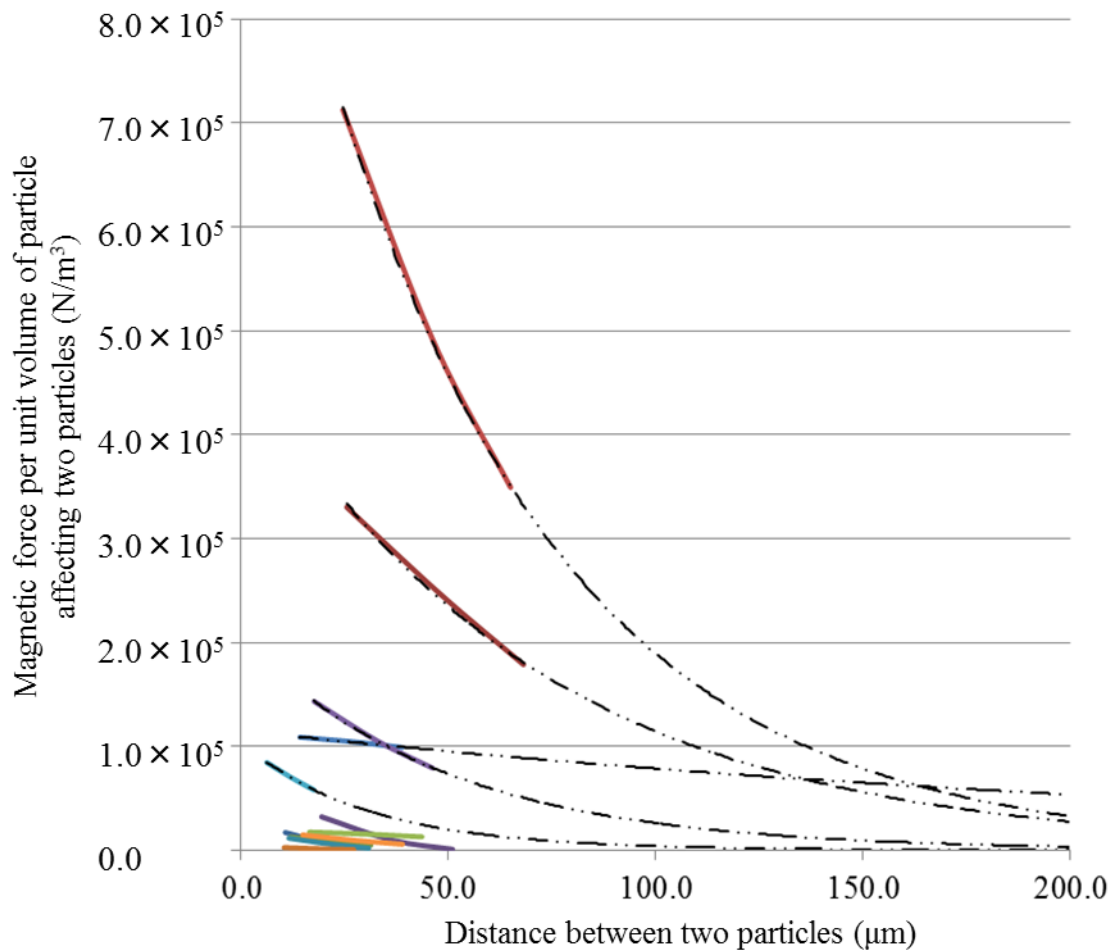


図 3-35 近接粒子と把持粒子とが粒子間磁気力によって結合する直前の 10 – 30 ms 間の粒子間磁気力の大きさと粒子間距離との関係。全ての実験ケースについてプロット。ただし、縦軸の粒子間磁気力は粒子体積で正規化されている。二点鎖線は指数関数的に減少する事を想定した場合の粒子間磁気力の減少傾向を示す。粒子径 10 – 40  $\mu\text{m}$ 、流速 0 – 300  $\mu\text{m}$  中で非接触磁気駆動する場合、粒子間距離 200  $\mu\text{m}$  程度に他の磁性微粒子が近接してくると粒子間磁気力が重力 ( $2 \times 10^4 \text{ N/m}^3$ ) に比べて相対的に顕著に作用しはじめる。

図 3-35 より、いずれの粒子においても、粒子間距離が短くなるにつれて粒子間磁気力が増加する傾向が見られている。把持されている粒子径や近接してくる粒子の粒子径、あるいは作用している磁束密度や磁気勾配にも依存するが、今回設定した試験条件では粒子間距離が 100 – 200  $\mu\text{m}$  以内（ただし、磁化軸上）にあるときに近接粒子による粒子間磁気力が顕著であった。



## 3.4 本章のまとめ

本章では、はじめに第 2 章で構築した磁性微粒子の可視化手法に加え、水平／垂直方向に空間的かつ時間的に変動可能な磁界を発生させることができる磁性微粒子の磁気駆動用電磁石を製作した。これらを組み合わせることで、磁性微粒子を含んだ流体を封止したセル（流体セル）中のマイクロオーダー磁性粒子の非接触磁気把持に取り組んだ。また、この非接触磁気把持技術を応用し、磁性微粒子に作用する力や場の影響をリアルタイムに計測する方法について検討した。さらに、粒子径、粘度、流速、磁界強度、磁気特性、濃度（粒子間距離）等の値が変化した場合の粒子挙動や粒子に対する作用力の計測を実施した。以上の事項に取り組み、以下の結果が得られた。

- 1) ナノ～マイクロオーダーの粒子径分布を持つ磁性微粒子を対象として、3 次元空間中（液中）に浮遊あるいは流動している多数の磁性微粒子のうち、指定した磁性微粒子（あるいは微小クラスタ）を指定した場所に外部磁界による磁気力によって非接触磁気把持することが可能であることを示した。
- 2) 電磁石に通電している電流変化から、3 次元空間中（液中）において磁性微粒子を非接触磁気駆動する際に支配的に影響を及ぼすと見なされる磁性微粒子間の吸引力や流体抵抗力や重力などについて、実験的手法による定量評価が可能であることを実証した。
- 3) 第 4 章においてより高度な非接触磁気操作に関する検討を行うに先立ち、流体セルの改造を行った。これまでは封入された流体セル中での磁性微粒子挙動が対象であったが、シリコンチューブを介して循環ポンプを流体セルに連結することでセル内の流体の流速制御を可能とした。これにより、流速や粒子径、粘度などを変化させた場合の非接触磁気把持されている磁性微粒子に作用する流体抵抗力や粒子間磁気力といった各種の力に関して体系的なデータを取得することができた。

以上の結果から、次章以降の非接触磁気操作において必要となる、マイクロオーダーの磁性微粒子に作用する支配的な力が何であるか、またそれらの力のオーダーや影響を及ぼす距離について知見を得ることができた。

## 参考文献

- 1) A. Nacev, C. Beni, O. Bruno, B. Shapiro: “The behaviors of ferromagnetic nano-particles in and around blood vessels under applied magnetic fields.”, *J. Magn. Magn. Mater.*, Vol. 323, No. 6, pp. 651 – 668 (2011)
- 2) C. Wilhelm, F. Gazeau, and J. C. Bacri: “Rotational magnetic endosome microrheology: Viscoelastic architecture inside living cells.”, *Phys. Rev. E*, Vol. 67, No. 6, 061908 (2003)
- 3) E. P. Furlani and K. C. Ng: “Nanoscale magnetic biotransport with application to magnetofection.”, *Phys. Rev. E*, Vol. 77, No. 6, 061914 (2008)
- 4) U. K. Cheang, D. Roy, J. H. Lee, and M. J. Kim: “Fabrication and magnetic control of bacteria-inspired robotic microswimmers.”, *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 97, No. 21, 213704 (2010)
- 5) S. Ostergaard, G. Blankenstein, H. Dirac, and O. Leistiko: “A novel approach to the automation of clinical chemistry by controlled manipulation of magnetic particles.”, *J. Magn. Magn. Mater.*, Vol. 194, No. 1 – 3, pp. 156 – 162 (1999)
- 6) J. Cai, Y. Li, X. Li, and D. Zhang: “Behavior of micromagnetic particles in an opposed-poles orientation magnetic field.”, *J. Magn. Magn. Mater.*, Vol. 246, No. 1 – 2, pp. 36 – 39 (2002)
- 7) Y. Ido, T. Yamaguchi, and Y. Kiuchi: “Distribution of micrometer-size particles in magnetic fluids in the presence of steady uniform magnetic field.”, *J. Magn. Magn. Mater.*, Vol. 323, No. 10, pp. 1283 – 1287 (2010)
- 8) R. Pastor-Satorras, and J. M. Rubi: “Dipolar interactions induced order in assemblies of magnetic particles.”, *J. Magn. Magn. Mater.*, Vol. 221, No. 1 – 2, pp. 124 – 131 (2000)
- 9) E. P. Furlani and K. C. Ng: “Analytical model of magnetic nanoparticle transport and capture in the microvasculature.”, *Phys. Rev. E*, Vol. 73, No. 6, 061919 (2006)
- 10) S. Shaw, and P.V.S.N. Murthy: “Magnetic targeting in the impermeable microvessel with two-phase fluid model – Non-Newtonian characteristics of blood.”, *Microvas. Res.*, Vol. 80, No. 2, pp. 209 – 220 (2010)
- 11) C. Tsouris and S. Yiacoumi: “Particle flocculation and filtration by high-gradient magnetic fields.”, *Sep. Sci. Technol.*, Vol. 32, No. 1 – 4, pp. 599 – 616 (1997)
- 12) E. P. Furlani: “Analysis of particle transport in a magnetophoretic microsystem.”, *J. Appl. Phys.*, Vol. 99, No. 2, 024912 (2006)

- 13) 津守不二夫, 平田正道, 島進: “FEM-DEM 連成モデルによる磁場中粒子挙動解析”, 粉体および粉末冶金, Vol. 52, No. 3, pp. 194 – 198 (2005)
- 14) A. Satoh and R. W. Chantrell: “Application of the dissipative particle dynamics method to colloidal dispersions.”, Mol. Phys., Vol. 104, No. 20, pp. 3287 – 3302 (2006)
- 15) K. Keshoju, H. Xing, and L. Sun: “Magnetic field driven nanowire rotation in suspension.”, Appl. Phys. Lett., Vol. 91, No. 12, 123114 (2007)
- 16) V. Schaller, U. Kräling, C. Rusu, K. Petersson, and J. Wippenmyr: “Motion of nanometer sized magnetic particles in a magnetic field gradient.”, J. Appl. Phys., Vol. 104, No. 9, 093918 (2008)
- 17) T. Ohara: “Particle capture theory and experiment on an amorphous magnetic ribbon filter.”, IEEE Trans. Magn., Vol. 20, No. 2, pp. 436 – 443 (1984)
- 18) F. Mishima, S. Fujimoto, S. Takeda, Y. Izumi, and S. Nishijima: “Development of control system for magnetically targeted drug delivery.”, J. Magn. Magn. Mater., Vol. 310, No. 2, Part 3, pp. 2883 – 2885 (2007)
- 19) S. V. Gorobets, and I. A. Melnichuk: “Ordering of two-dimensional system of ferromagnetic particles in magnetic field.”, J. Magn. Magn. Mater., Vol. 182, No. 1 – 2, pp. 61 – 64 (1998)
- 20) Q. Ramadan, D. P. Poenar, and C. Yu: “Customized trapping of magnetic particles.”, Microfluid. Nanofluid., Vol. 6, No. 1, pp. 53 – 62 (2009)
- 21) H. Sawada, H. Kanda, and H. Suenaga: “The 10 cm × 10 cm magnetic suspension and balance system at the National Aerospace Laboratory.”, AIAA-91-0397, 29th Aerospace Sciences Meeting (1991)
- 22) M. Hara, H. Nose, S. Tokura, K. Uematsu, K. Matsunaga and H. Sawada: “Forced spinning system of a floating model under magnetic suspension and balancing.”, 7th International Symposium on Magnetic Suspension Technology (2003)
- 23) S. Tokura, M. Hara, N. Kawaguchi, J. Izawa, and N. Amemiya: “Visualization of magnetic microparticles in liquid and control of their motion using dynamic magnetic field.”, J. Appl. Phys., Vol. 107, No. 9, 09B521 (2010)

## 第4章 磁性微粒子の非接触磁気操作

### 4.1 本章の背景と狙い

ドラッグデリバリーや細胞／DNAなどのマニピュレーションなどにおいて、駆動させる手段の一つとしてそれらに磁性微粒子を付着させて磁気駆動を行う方法が考えられている<sup>1)・11)</sup>。液中で磁気微粒子を駆動する際には重力や浮力が作用することはもちろんのこと、磁気異方性のある磁性微粒子やチェーンクラスタ化した磁性微粒子群などでは、磁界の向きにそれらが回転する磁気トルク<sup>7)</sup>も影響を及ぼす。さらに、粒子径がナノ～マイクロオーダーの磁性微粒子を外部磁界によって非接触磁気駆動する場合、粒子径が小さくなることによって、外部磁界による磁気力に対して、相対的に流体抵抗や近接粒子による粒子間磁気力<sup>12), 13)</sup>の影響が大きくなる。そのため、多数の磁性微粒子が存在するシチュエーションにおいて特定の磁性微粒子を想定通りに操作するためには単に磁気勾配をつけて駆動せればよいのではなく、粒子に作用する前述の力を把握しつつ特定の粒子を選択的に駆動するための必要最低限の磁気力を決定し、かつ周囲磁性微粒子との粒子間磁気力の作用範囲を把握したうえで適切な強度の磁界を発生させて磁気駆動することが重要である。

本論文の第2章において、時間変動する磁界下における磁性微粒子挙動の可視化に関する研究<sup>15)</sup>を、また第3章において、流体中で浮遊／流動している磁性微粒子に対する非接触磁気把持及び作用力の定量的評価手法を構築した<sup>15)</sup>。しかしながら、個々の磁性微粒子に対する作用力の大きさ、あるいは粒子間磁気力が作用する範囲などを実測により把握したうえでその知見に基づいた非接触磁気駆動を実証した研究は未だない。さらに、ドラッグデリバリーや細胞／DNA操作などの磁気的なマニピュレートや、磁性材料（磁性微粒子など）同士や磁性材料（磁性微粒子など）と非磁性材料（非磁性微粒子など）とを分離するための磁気分離では、磁性微粒子の駆動力として磁気力を用いるため、磁性微粒子は磁化される。そのため、ある距離に近接している磁性微粒子同士は磁気的マニピュレーション中に粒子間磁気力でチェーンクラスタ化し凝集してしまう<sup>16)</sup>。たとえ磁界をゼロに戻したとしても磁性微粒子が磁化されており自然に分散することは期待できない。これに関して、磁性微粒子表面をコーティング<sup>17)</sup>して静電的な反発力を持たせるなどして凝集を抑制する方法については研究され適用されている事例が多い一方、一旦チェーンクラスタ化した磁性微粒子群を切断する方法、特に非接触磁気駆動に利用している磁気力そのものを使

い切断して分散させる方法については十分に研究されていない。

そこで本章では、前述した作用力の評価に用いた非接触磁気把持の手法<sup>15)</sup>を応用し、浮遊している多数の磁性微粒子からの選択的かつ任意の軌道にそった磁気ガイドを実証することを目的とした。また、そのような磁界条件下で磁氣的にチェーンクラスタ化してしまった磁性微粒子群を磁気力で切断する磁気切断の可能性についても検討した。

ここで、第3.4節で述べたように、本章においても、第3章で製作した磁性微粒子磁気駆動用の常伝導電磁石が発生可能な磁気力の制約から、サイズとしてはマイクロオーダーのみを、磁気特性としては強磁性体の未飽和状態のみを対象とする。

はじめに、前節までに実験的な手法を用いて体系的に明らかにした様々な条件下における粒子挙動や粒子に作用する力に関するデータを分析し、非接触磁気操作に必要な力について把握する。そして、その知見に基づき、磁性微粒子の位置を指標としたフィードバック制御によって多数の浮遊、流動している磁性微粒子から選択的に特定の磁性微粒子を把持し任意の軌道で磁気駆動することを試みる。磁気駆動の対象は、流体セル内の流体中に浮遊、流動している磁性微粒子（微小クラスタ）である。高速画像処理を利用し粒子座標を指標としたフィードバック制御によって、必要最小限の磁界を発生させることで対象磁性微粒子自身及び周囲磁性微粒子の磁化による磁気双極子場の影響範囲を最小限にとどめる。

次に、このような磁気操作中の粒子凝集性について把握した後、交番磁界を与えることで一旦チェーンクラスタ化した磁性微粒子群のクラスタ切断について検討する。これにより、作用させる磁界や周波数、チェーンクラスタの長さとの相関関係を把握し、クラスタ切断の可能性について明らかにする。

## 4.2 非接触磁気操作に必要な力の分析

### 4.2.1 非接触磁気操作に必要な力についての分析方法

初めに分析に用いたデータの計測方法について概要を記載する（詳細は第3章を参照のこと）。第3.3節では、流速制御可能な流体セル中の磁性微粒子を対象として、条件をかえて磁性微粒子に作用する力の計測を行い、磁気駆動用電磁石によって発生させる磁界及び磁気勾配と種々の作用力との相関関係を定量的に調べた。変化させた値は、溶媒の流速、溶媒の粘度、粒子径（把持粒子と吸引粒子）、粒子間距離、磁束密度（磁気勾配）であった。

ここで、溶媒の流速は約 0 – 500  $\mu\text{m/s}$ 、溶媒の粘度は 1, 2.25, 4.5 Pa·s、粒子径は 10 – 50  $\mu\text{m}$ 、

粒子間距離は  $0 - 60 \mu\text{m}$ 、磁束密度は  $0 - 0.1 \text{ T}$ （磁気勾配は  $0 - 4 \text{ T/m}$ ）とした。

重力と浮力については、画像処理によって取得する粒子体積と式 2-4, 2-5 を用いて算出した。なお、粒子径は第 3.3.2 項で述べたように一方向のカメラから撮影した投影面積から円柱状の粒子形状を想定し等価的な球の直径を算出し、粒子径とした。また、非接触磁気把持されている磁性微粒子に作用している磁気力は、計測値である各コイル電流と等価的な直径と式 3-3 とから算出される。

流体抵抗力は周囲に把持されている磁性微粒子以外に近接する磁性微粒子が存在していない状態におけるその他の力として図 3-17（右）に示したベクトル演算により算出した。また、近接する磁性微粒子が発生する磁界によって把持粒子に作用する粒子間磁気力は第 3.3.2 項で説明したように、近接粒子がいない時点における「その他の力」からの差として求めた。

第 3.3 節で得られたデータを基に、理論式から正確に把握することが難しい粒子に作用する流体抵抗力和粒子間磁気力について、これらの力と電磁石によって発生させるべき外部磁界による磁気力との相関を把握する。これにより、磁性微粒子の非接触磁気操作時に必要な力の大きさや影響範囲について明らかにし、第 4.3 節以降で実施する様々な非接触磁気操作の条件選定の基準とする。

## 4.2.2 非接触磁気操作に必要な力の分析結果

### 4.2.2.1 粒子間磁気力に対して流体抵抗力が支配的な場合

図 4-1 には、純水とグリセリンの混合量を変えることで粘度を  $1 - 4.5 \text{ Pa}\cdot\text{s}$  まで変化させた条件下で作用している流体抵抗力和、それらに抗して非接触磁気操作させるに最低限必要な磁気力との関係を粘度別にグループ分けして示した。流体抵抗力の最大値は約  $1000 \text{ pN}$  であり、非接触磁気操作に必要な磁気力は最大で約  $1200 \text{ pN}$  であった。図 4-1 に引かれている磁気力と流体抵抗力が等しくなる直線を境に、下側にプロットされている試験条件は、流体抵抗力の向きが重力方向と逆向きのケースであり、上側にプロットされている試験条件は、流体抵抗力の向きが重力方向と同じケースである。非接触磁気操作に必要な力と粘度との明確な関係は見られなかった原因の一つとして、粒子径のばらつきが考えられるため、図 4-2 に粒子径と粘度で正規化した場合についてプロットした。

図 4-2 の横軸は、流体抵抗力が粒子径と粘度と相対速度に比例した関係を持つことを考慮すると相対速度相当を表している。図 4-2 の各グラフから流体速度相当の値と磁気力との間には比例関係が見られ、直線近似した傾きは粘度が大きくなるにつれて大きくなっている。

これは、粘度があがると作用する流体抵抗が大きくなるため、同じ流速中で非接触磁気操作に必要な磁気力が大きくなることを意味し、定性的な傾向と一致する。今回の試験条件では、粘度が 4.5 倍になると流れに逆らって磁気駆動する際に必要な磁気力は約 6 倍必要となることが示されている。また、これらのグラフから、相対速度（つまり流速）が早いほど、あるいは粒子径が大きいほど、非接触磁気操作に必要な磁気力が大きくなることがわかる。今回評価に用いている粒子径は等価な球の直径に換算した平均粒子径であり、図 4-1 におけるばらつきの原因の一端となっている。しかしながら、それらのばらつきの程度を実測によって示すことができた点は本研究の特筆すべき成果の一つである。

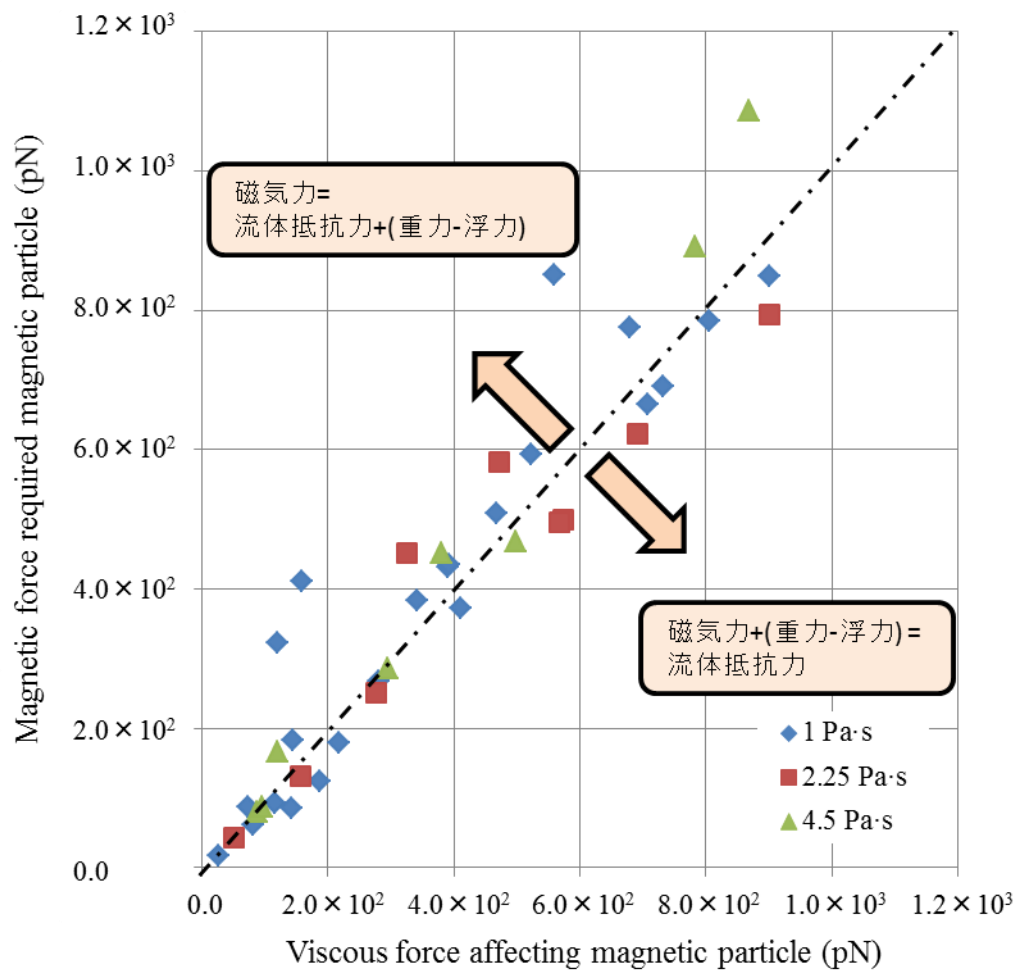


図 4-1 流体中の磁性微粒子に作用する流体抵抗と非接触磁気操作に必要な磁気力。一点鎖線は磁気力と流体抵抗が互いに反対向きに同じ力で作用している境界となる。実際には重力と浮力の差分が磁気力か流体抵抗と同じ方向に作用する。上図では、境界線より上側のケースでは重力と浮力の差分は流体抵抗と同じ向きに作用しており、境界線より下側のケースでは重力と浮力の差分は磁気力と同じ向きに作用する。



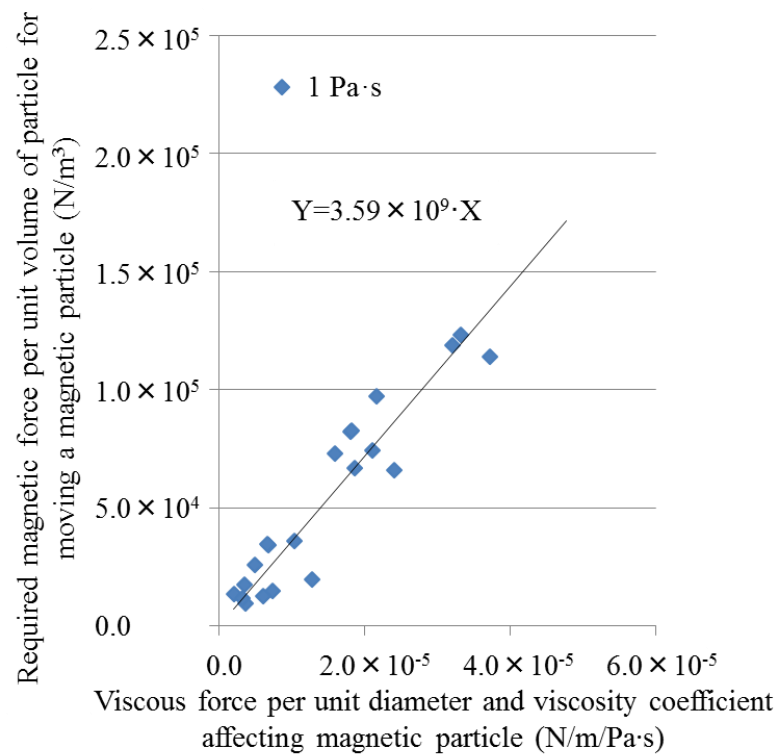


図 4-2(a) 正規化した流体抵抗力和磁気力(粘度  $\text{Pa}\cdot\text{s}$ )

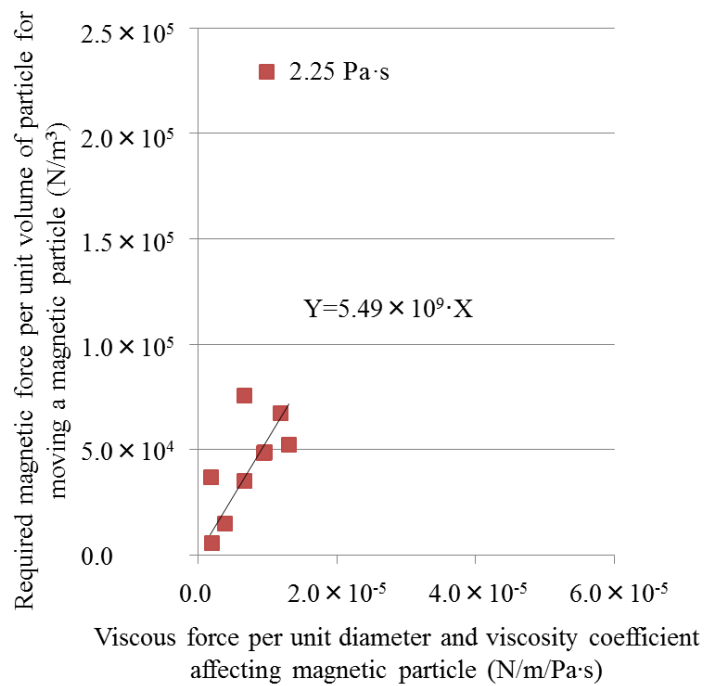


図 4-2(b) 正規化した流体抵抗力和磁気力(粘度  $2.25 \text{ Pa}\cdot\text{s}$ )

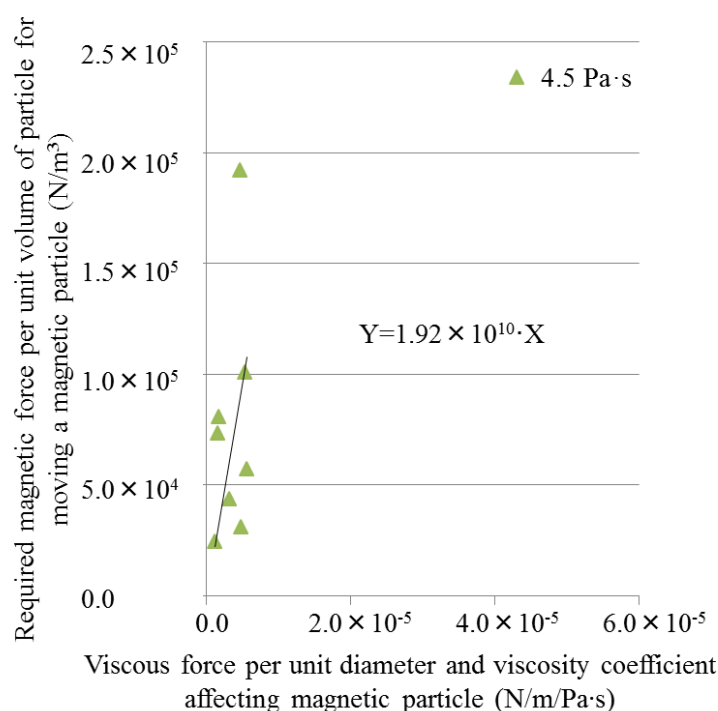


図 4-2(c) 正規化した流体抵抗力和磁気力(粘度 4.5 Pa·s)。粘度別各グラフの横軸は流速相当の値を表す。重力に反して磁性微粒子を駆動するために必要な磁気力は  $2 \times 10^4 \text{ N/m}^3$  であるので、ヒトの血液相当の粘度(4.5 Pa·s)中では数十～数百マイクロメートル／秒で駆動させる場合には、重力に比較して流体抵抗力が支配的になる。

#### 4.2.2.2 粒子間磁気力と流体抵抗力が支配的な場合

図 4-3 には、近接してくる磁性微粒子との間に生じる粒子間磁気力と、それらに抗して非接触磁気操作するのに必要な磁気力との関係を粒子体積と粒子間距離の四乗で正規化して示した(後述する式 5-2 参照のこと)。正規化された粒子間磁気力の増加に従って非接触磁気操作に必要な磁気力も増加する傾向が見られている。一方で、このグラフからは、粘度による顕著な違いは見られなかったため、図 4-4 中に粘度による区別なくプロットした場合における非接触磁気操作に必要な磁気力と正規化された粒子間磁気力との関係を近似曲線とともに示した。また、粒子間磁気力が作用している時の流体抵抗力、及び非接触磁気操作に必要な磁気力と正規化された流体抵抗力との関係を示す近似曲線も合わせて示した。非接触磁気操作に必要な力よりも上方に流体抵抗力がプロットされているグループ(“Viscous force (High)”)と、非接触磁気操作に必要な力よりも下方に流体抵抗力がプロット

されているグループ（”Viscous force (Low)”）とに分けると、”Viscous force (High)”のグループは粒子間磁気力が小さい領域に多く、”Viscous force (Low)”のグループは粒子間磁気力が大きい領域に多くなる傾向があり、粒子間磁気力が作用し始めると重力や流体抵抗など以上に支配的な力となりえることが示された。

近接粒子に作用する外部磁界と粒子間磁気力との間には後述する式 5-2 のような関係が成り立つ。図 4-5 は今回の試験結果について整理して示したものである。

式 5-2 と比較すると、この場合、

$$(K_1 \times (1 + K_2 \times (D_{p2} / L_p)^3) = 6.33 \times 10^4 \quad (4-1)$$

となる。理論値が式 5-3 から約  $5.54 \times 10^5$  であるため、実験から求めた値は理論値に対して 1/7 倍となった。

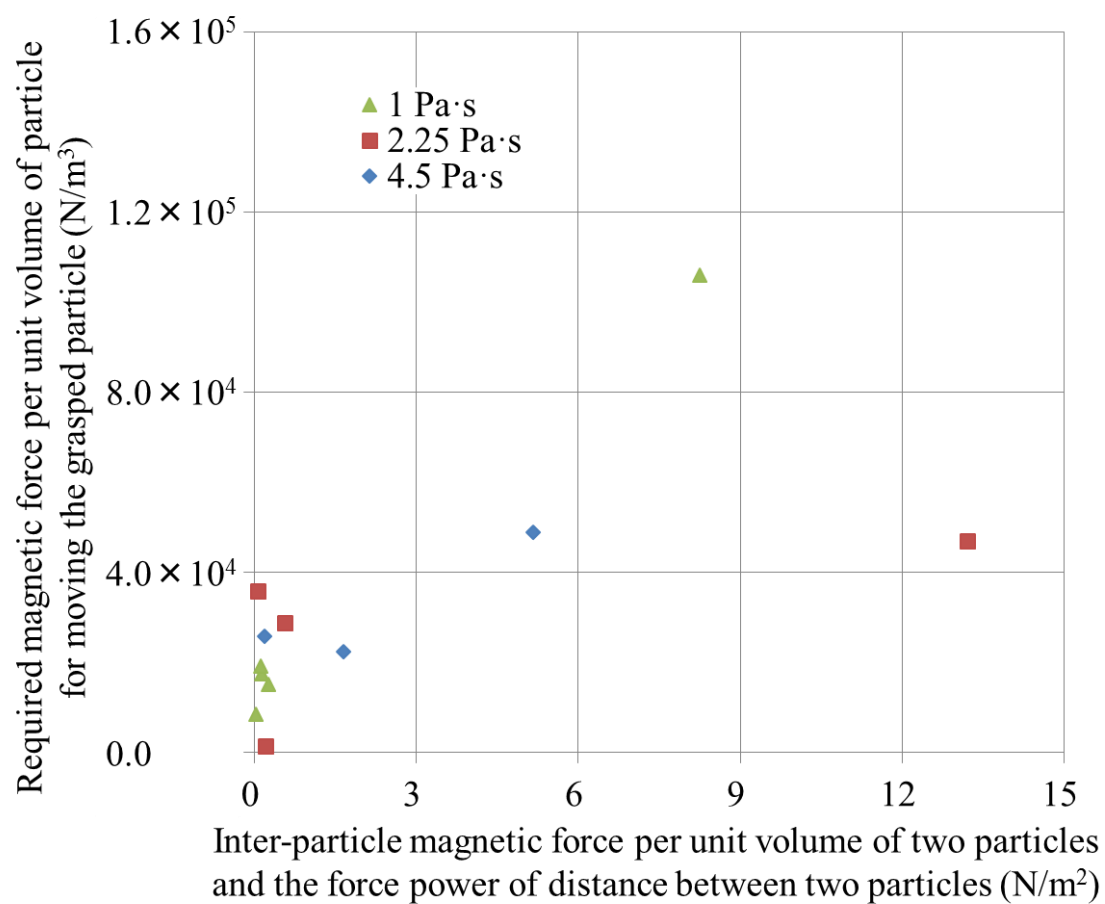


図 4-3 粒子体積及び粒子間距離の四乗あたりの粒子間磁気力と非接触磁気操作に必要な力との関係(粘度別)。粘度による傾向の違いは見られない。

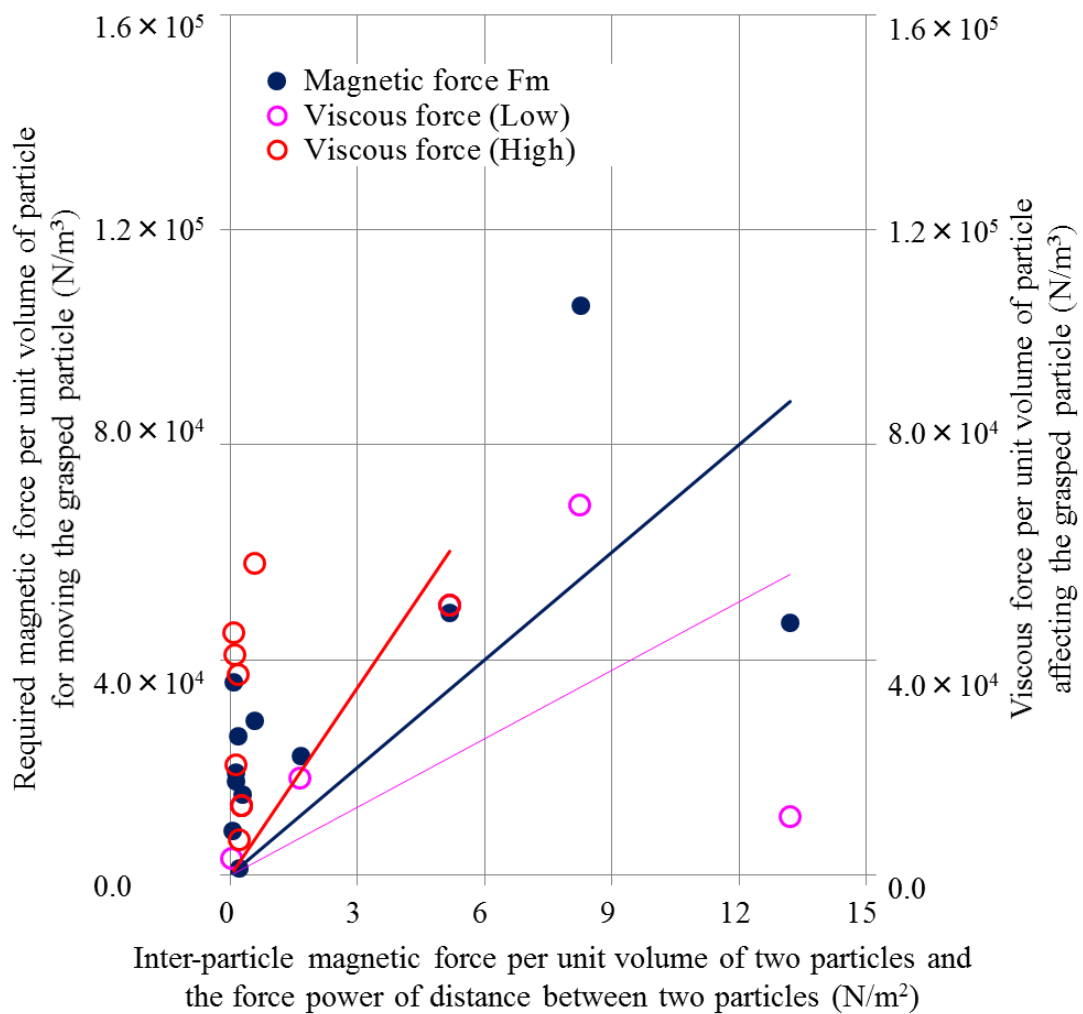


図 4-4 粒子間磁気力と流体抵抗力が作用する条件下で非接触磁気操作に必要な力。非接触磁気操作に必要な力よりも上方に流体抵抗力がプロットされているグループ(“接触磁気操作に必要な力よりも上方に流体抵抗”)と、非接触磁気操作に必要な力よりも下方に流体抵抗力がプロットされているグループ(“と、非接触磁気操作に必要な力よりも下方に”)とに分けると、“とに分けると、“作に必要な力よりも下方に流のグループは粒子間磁気力が小さい領域に多く、“グループは粒子間磁気力が小さい領域に多くのグループは粒子間磁気力が大きい領域に多くなる傾向にある。

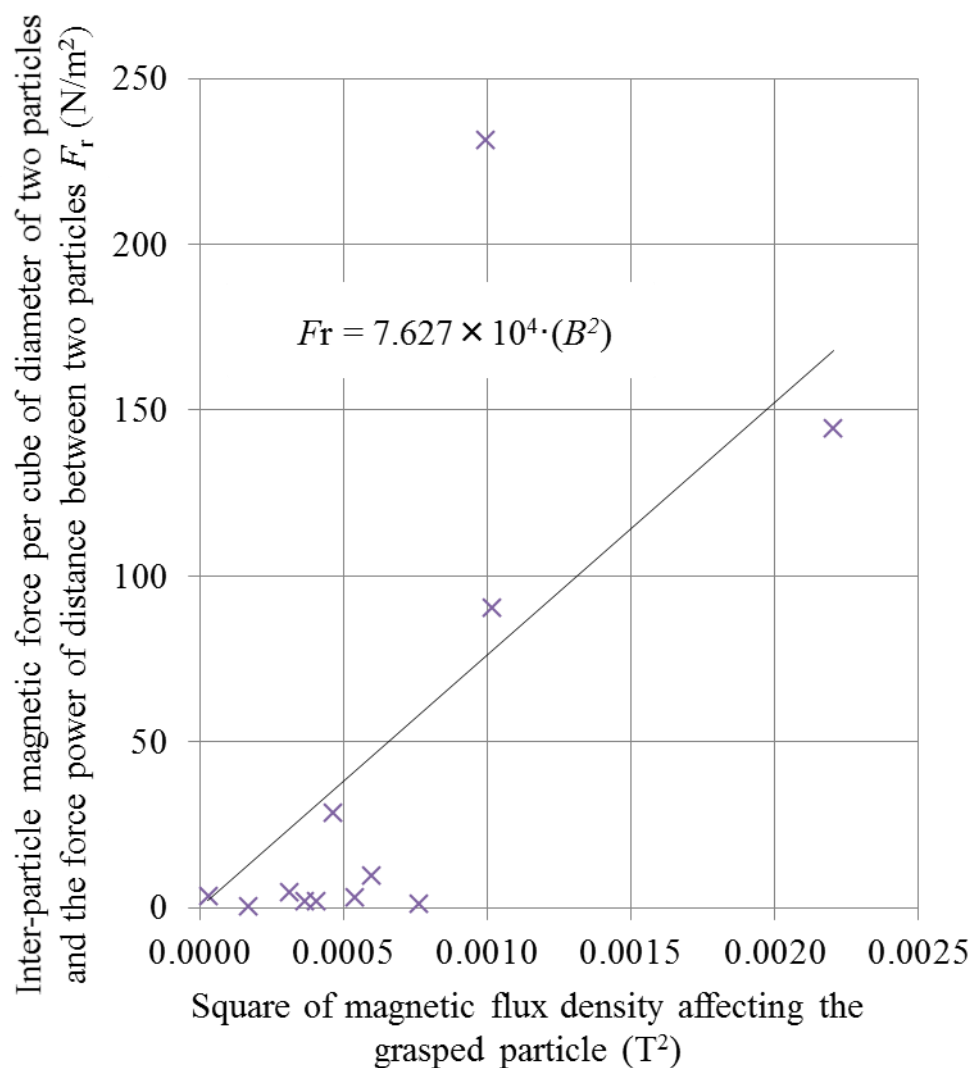


図 4-5 磁束密度(二乗)と粒子間磁気力との関係。近似曲線は、磁性微粒子に作用する磁束密度から粒子間磁気力を算出するための関係式で、第 5 章で粒子挙動解析を行う際に利用する。理論式からは  $y = 5.54 \times 10^5 \cdot x$  となる。

次に、図 4-5 に示した近似曲線をもとに、任意の磁束密度と粒子径と粒子間距離での磁気力と粒子間力との比較を行った。図 4-6 には、図 4-5 において正規化されていた縦軸の値に、把持されている粒子と近接粒子がいずれも直径 20  $\mu\text{m}$  であり、磁束密度が 0.1 T、0.05 T、0.01 T の場合における粒子表面間距離をパラメータとした粒子間磁気力の分布を示した。粒子間距離が 0.5 mm 以上離れている場合は重力（この粒子径では約 82 pN）に比べて無視できる程度の粒子間磁気力が作用する状態となり、磁性微粒子の非接触磁気操作時にはほとんど影響を及ぼさないことがわかった。

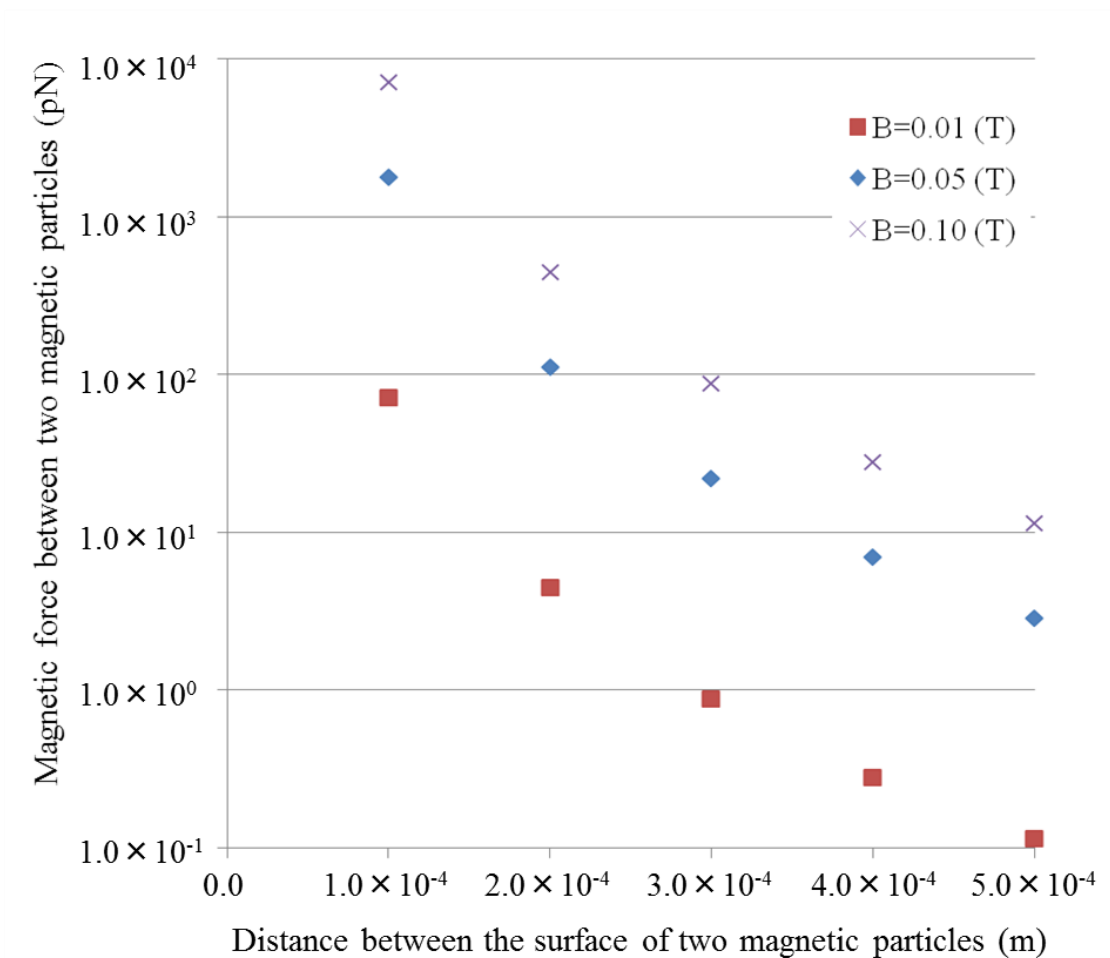


図 4-6 磁束密度が変動する場合における、粒子間距離に対する粒子間磁気力の比較。磁束密度が 0.1 T、0.05 T、0.01 T の場合における粒子表面間距離をパラメータとした粒子間磁気力の変化を示した。粒子間距離が 0.5 mm 以上離れている場合の粒子間磁気力は重力に比べて無視できる程度まで減少する。

## 4.3 磁性微粒子の磁気ガイド

### 4.3.1 磁性微粒子挙動

はじめに、本節において磁気ガイドの対象とする磁性微粒子に影響を及ぼす作用力や場について以下にあらためてまとめる。

外部磁界  $\mathbf{H}$  によって磁性微粒子（磁化  $\mathbf{M}$ ）に作用する磁気力  $\mathbf{F}_p$  は、磁気エネルギー  $U$  から次のように表される。

$$\mathbf{F}_p = \nabla U = \nabla(\mu_0 \mathbf{M} \cdot \mathbf{H}) \cdot V_p = \mu_0 \mathbf{M} \cdot \nabla \mathbf{H} \cdot V_p \quad (4-2)$$

ここで、 $\mu_0$ は真空透磁率、 $V_p$ は粒子の体積である。

磁性微粒子に作用する重力、及び浮力は、

$$\mathbf{F}_g = \rho_p \cdot V_p \cdot \mathbf{g} \quad (4-3)$$

$$\mathbf{F}_b = \rho_f \cdot V_f \cdot \mathbf{g} \quad (4-4)$$

ここで  $\rho_p$  と  $\rho_f$  は粒子と流体の密度を表し、 $\mathbf{g}$  は重力加速度を表す。

流体抵抗力はニュートン流体を仮定すると以下のように表される<sup>18)</sup>。

$$\mathbf{F}_v = 6\pi\eta R_p \cdot (\mathbf{v}_p - \mathbf{v}_f) \quad (4-5)$$

ここで、 $\eta$  は流体の粘度を、 $\mathbf{v}_f$  は流体の速度である。 $R_p$  と  $\mathbf{v}_p$  はそれぞれ粒子の半径と速度である。ここで、磁気モーメント  $\mathbf{P}_{m1}$  と  $\mathbf{P}_{m2}$  を持つ磁化された二つの磁性粒子間に蓄積される磁気双極子相互作用エネルギーは、

$$U_d = -\left(\frac{\mu_0}{4\pi}\right) \cdot \left(\frac{3(\mathbf{P}_{m1} \cdot \mathbf{r})(\mathbf{P}_{m2} \cdot \mathbf{r})}{r^5} - \frac{(\mathbf{P}_{m1} \cdot \mathbf{P}_{m2})}{r^3}\right) \quad (4-6)$$

ここで  $r$  は磁化されている磁性微粒子間の距離、 $\mu_0$  は真空透磁率である。今、これら二つの磁性微粒子の磁気モーメントが一直線上に平行にある場合、上記の磁気双極子相互作用エネルギーは簡易的に以下のように表される。

$$U_d = \left(\frac{\mu_0 \cdot \mathbf{P}_{m1} \cdot \mathbf{P}_{m2}}{2\pi \cdot r^3}\right) \quad (4-7)$$

このとき、これらの磁性微粒子に作用する粒子間磁気力  $\mathbf{F}_r$  は、



$$\mathbf{F}_r = \frac{\partial U_d}{\partial r} = \left( \frac{3\mu_0 \cdot \mathbf{P}_{m1} \cdot \mathbf{P}_{m2}}{2\pi \cdot r^4} \right) \quad (4-8)$$

ナノオーダー粒子を対象とする場合、熱的な影響が相対的に大きくなる<sup>19)</sup>。ブラウン運動によって影響を受ける粒子径と作用力との関係は以下のように表される<sup>18)</sup>。

$$\mathbf{F}_h < \frac{kT}{D_p} \quad (4-9)$$

ここで、 $\mathbf{F}_h$ はブラウン運動によって受ける力、 $k$ はボルツマン定数、 $T$ は絶対温度を表す。本研究では、後述するクラスタ切断を行う手段として交番磁界を作用させることによるクラスタの回転挙動を利用する。磁界とある角度をなしている時に磁性微粒子に蓄積されているポテンシャルエネルギー（ゼーマンエネルギー）と、角度 $\theta$ に関して微分することで得られる磁気トルクは以下のように表される。

$$U = \mu_0 \mathbf{P}_m \mathbf{H} \cos \theta \quad (4-10)$$

$$\mathbf{T} = \mu_0 \mathbf{P}_m \mathbf{H} \sin \theta \quad (4-11)$$

ここで、 $U$ はゼーマンエネルギー、 $\mathbf{T}$ は磁気トルクである。

また、交番磁界作用時に粒子は並進、あるいは回転運動で振動挙動を示す。固体の単振動エネルギーを以下のように表す。

$$U_v = \frac{1}{2} m (A\omega)^2 \quad (4-12)$$

ここで、 $U_v$ は単振動エネルギー、 $m$ は粒子質量、 $A$ は振幅、 $\omega$ は角速度である。

### 4.3.2 磁気ガイド方法

第 3 章において、流体セル中の任意の磁性微粒子を非接触磁気把持できることを示した。このとき、把持対象の磁性微粒子の断面積とその範囲、及び把持する座標を指定し、必要最小限の磁界を作用させることで目的の磁性微粒子を選択的に把持することができた。すなわち、把持対象の磁性微粒子より大きいものは作用された磁界による磁気力が静止するには大きすぎて磁極に向かって吸引され捕捉される。一方、把持対象の磁性微粒子より小さいものは作用された磁界による磁気力が重力とバランスするには小さすぎて沈降してしまう。他方、把持する磁性微粒子と同等な磁気特性や粒子体積を有する場合は、同じ相対的な位置関係において把持対象の磁性微粒子と同じように流体中で静止させることができる。これらを発展させ、静止させるだけでなく任意の場所に把持した磁性微粒子を移動させること、すなわち磁気ガイド方法について本項では検討を行う。第 3 章で構築した磁性微粒子の非接触磁気把持用プログラムのアルゴリズムをもとに、目標座標を 1 ピクセル単位で増減させ PID 制御（制御周期 10 ms）できるよう変更した。これによって微小移動ごとに作用力とのバランスを取りながら指定する軌道にそって粒子移動可能とした。以下に磁気ガイド方法を示す。

#### 4.3.2.1 磁気ガイドの試験装置

磁気駆動には、図 3-21 に示した I 型鉄心の電磁石を水平、垂直方向に 4 つ配置した流速制御可能な磁性微粒子駆動装置を用いた。各電磁石には独立した 4 つの電源から電流が供給される。この時、上と下コイル、あるいは左と右コイルを同時に通電しないこととした。電磁石のギャップ中心に上下に出入り口のある石英ガラスセルを設置した。セルの出入り口にはシリコンチューブを接続し、入口側のシリコンチューブ上流側から速度調整可能な粒子循環用ポンプを介して純水と磁性微粒子を、それらを貯蔵しているタンクから供給した。出口側のシリコンチューブ下流端は粒子供給用のタンクに接続し粒子含有水が循環するようにした。石英ガラスセル後方からハロゲンランプにて光を照射し、石英ガラスセル正面からマイクロスコープを介して高速カメラで粒子画像を 100 fps でコントローラに画像集録した。集録した画像はホストコンピュータ上で 10 fps でリアルタイムモニタできるようにした。コントローラでは、100 Hz の制御周期で粒子位置や粒子断面積、各電磁石に通電している電流もロギングした。

#### 4.3.2.2 磁気ガイドの制御方法

磁気ガイド用の磁性微粒子磁気駆動装置のブロック図は図 3-5 を元とした。設定部はホスト PC であり、磁気駆動対象となる磁性微粒子の断面積と、移動先の粒子座標を入力する（あるいは、次に移動したい方向）。調整部はコントローラと電源から構成され、検出部である高速カメラによって取得された現在の粒子座標と入力された目標粒子座標との差から電源へ供給すべき電流値を算出する。操作部は磁性微粒子の磁気駆動用電磁石であり、供給された電流に応じた磁界をギャップ内に発生させ、磁性微粒子に磁気力を作用させる。高速カメラによって収集されコントローラに送られた粒子画像は随時二値化処理され、視野内の粒子座標と粒子面積が算出される。制御対象の磁性微粒子は連続した二枚の粒子画像を比較しトラッキングされる。ここで、粒子制御のフローを述べる。石英ガラスセル内で浮遊、流動している多数の磁性微粒子から制御対象である指定した断面積を持った磁性微粒子を検出しトラッキングを開始する。目的の磁性微粒子がトラッキングされたらフィードバック制御を開始し、所定の空間中に一旦把持する。ここで、フィードバック制御には PID 制御を用い、あらかじめ適切な比例係数、微分係数、積分係数を決定しておき必要最小限の磁界で磁性微粒子を制御可能としておく。目的の磁性微粒子を把持することができたら、移動先の座標を 1 ピクセル単位で、最大 100 Hz 周期で更新する。移動中、停止中も含めて必要最小限の磁界で位置制御を行うことで、制御対象以外の磁性微粒子への影響を最小限とする任意軌道の磁気ガイドを可能とする。

具体的な磁気ガイド手順を次に示す。はじめに、上流側のタンクに純水と磁性微粒子を満たしておく。粒子循環用ポンプを駆動しシリコンチューブを介して石英ガラスセルに磁性微粒子（及び純水）を供給する。次に、磁性微粒子用磁気駆動装置を起動させ高速カメラを介して粒子画像を 100 fps で連続的に取得する。モニタ用の PC で磁性微粒子用磁気駆動装置へのインターフェースプログラムを起動し、非接触磁気操作の対象とする磁性微粒子の粒子径（必要に応じてその範囲）と初期把持位置を入力する。その後、粒子把持プログラムを実行開始する。目標の範囲にある磁性微粒子が自動的にマーキングされて追尾されるため、「把持開始」を選択することで所定の把持位置で静止させる。以上の手順に従って磁性微粒子の把持に成功したら、方向キーによって磁性微粒子の磁気ガイドを試みた。

### 4.3.3 磁気ガイド結果

#### 4.3.3.1 非接触磁気駆動性能について

磁性微粒子用磁気駆動装置を用いて、石英ガラスセル中に浮遊、流動している多数の磁性微粒子の中から、指定した磁性微粒子の非接触磁気駆動性能を評価した。図 4-7 には指定した磁性微粒子を矩形軌道（約 200  $\mu\text{m}$  角）で磁気ガイドした際の一例を示した。図中、丸印で囲った白い粒子が制御対象の磁性微粒子であり、その軌道がわかりやすいように画像処理によって残像をグレー色で画像内に示した。画像一枚目は指定した磁性微粒子を把持した瞬間であり、 $t = 0 - 15 \text{ s}$  で右方向、 $t = 15 - 24 \text{ s}$  で上方向、 $t = 24 - 36 \text{ s}$  で左方向、 $t = 36 - 44 \text{ s}$  で下方向に誘導して出発地点に戻した。出発地点でしばらく把持した後、 $t = 44 \text{ s}$  以降で把持制御を停止すると、磁性微粒子が重力沈降によって下方に落下した。図 4-8 には非接触磁気駆動開始前に磁気把持した磁性微粒子に支配的に作用している力のベクトル図を示した。粘性抵抗力が左下方向に作用していることから流体の流れは左下方向であり、重力と粘性抵抗力を支えるために磁気力は右上方向に作用して釣り合いを保っていた。図 4-9 には図 4-7 で示した非接触磁気駆動中の磁性微粒子とその周辺の磁性微粒子について、それらの画像と軌跡とを掲載した。それぞれの粒子の短辺と長辺の長さは、非接触磁気駆動対象の磁性微粒子が  $17 \times 27 \mu\text{m}$ 、周辺の磁性微粒子 A-E は  $11 \times 51 \mu\text{m}$ 、 $20 \times 280 \mu\text{m}$ 、 $10 \times 12 \mu\text{m}$ 、 $10 \times 12 \mu\text{m}$ 、 $7 \times 9 \mu\text{m}$  であった。また、粒子の軌跡に併記した step 1-5 は、非接触磁気駆動中の磁性微粒子のフェーズを表している。すなわち、step 1 で磁性微粒子を把持し、step 2 で右方向に、step 3 で上方向に駆動させた。非接触磁気駆動中の磁性微粒子を除き、粒子長が約  $280 \mu\text{m}$  の粒子 B が step 1 のフェーズで上方向に牽引された以外、その他の粒子 A, C-E は重力と流体抵抗力の影響で下方に落下した。磁性微粒子 A は、Step 2 で非接触磁気駆動対象粒子が右方向に移動している間、同様に右方向に動く傾向は示しているが水平移動とはならず落下しており、重力と流体抵抗力が非接触磁気駆動対象粒子よりも大きく作用していると考えられる。いずれの周辺粒子においても非接触磁気駆動の対象粒子と同じ動きを示していない。つまり、十分な速度で画像処理し、選択した磁性微粒子に必要な最小限の磁気力を適切な方向に作用させることで、磁性微粒子を選択的に非接触磁気駆動可能である事を示した。

次に、ほぼ同じ形状、同じ断面積の磁性微粒子が存在している場合の非接触磁気駆動対象粒子とその周辺粒子の軌跡を図 4-10 に示す。非接触磁気駆動対象粒子とほぼ同じ形状、同じ面積を持つ磁性微粒子 A は全体的に右方向に流される傾向にあるもののほぼ同じ軌跡を取ることが示された。その他の周辺粒子 B-D は形状が異なり断面積も小さいため、図 4-9 の周辺粒子と同様に指定した軌道で駆動されていない事があらためて示された。

以上の結果、液体を充填したガラスセル空間内に浮遊、流動している磁性微粒子（微小クラスタ）を、高速画像処理による粒子座標を指標としたフィードバック制御を行うことにより、選択的に任意の軌跡で磁気ガイドできた。粒子サイズが異なる磁性微粒子が周囲に存在する状態で任意軌跡での磁気ガイドを行う場合、粒子体積が 3.6 %異なる磁性微粒子ではほぼ同様な軌跡を行うのに対して、粒子形状はもとより粒子体積が 20.9 %以上異なる磁性微粒子では磁気力の影響を受けてはいるものの、磁気力や流体抵抗や重力の影響度が異なりフィードバック制御に従わないことがわかった。これより、選択的な非接触磁気駆動、あるいは反対に磁気分離が可能であることが示された。

本実験では、磁気把持した磁性微粒子に作用する力を計測するために、磁気駆動用電磁石に通電している各コイル電流と粒子形状を計測している。通常、磁気把持した磁性微粒子を対象として、重力、浮力、磁気力を算出し、ベクトル演算から釣り合うために作用している“その他の力”を算出している<sup>10)</sup>。図 4-9 の Step 1 で示した磁気把持のフェーズでは、“その他の力”として考えられる支配的な力は流体抵抗力である。磁気把持した磁性微粒子以外の周辺に存在する磁性微粒子について、同様な方法で釣り合うための“流体抵抗力”を計算した（前者）。一方、式 4-5 から、磁気把持した磁性微粒子の代表長さ（粒子画像の対角線長さとする）との比から算出した実際に作用していると考えられる“流体抵抗力”を算出（後者）し比較検討した。図 4-9 の Step 1 において、周辺磁性微粒子 B のみが後者の値が前者の値を 60 %以上下回っている。つまり、作用している流体抵抗力が磁気力に比べて相対的に小さく、磁気力と重力が支配的であることを意味している。これは図 4-9 の Step 1 においては周辺磁性微粒子 B のみが磁気力が作用している方向に移動し、それ以外の周辺磁性微粒子は流体抵抗力と重力の作用している方向に移動していることと同じ傾向を示している。さらに、図 4-10 の Step 1 の結果をもとに同様な比較を行った結果、磁気把持した磁性微粒子とほぼ近い動作をしている周辺磁性微粒子 A は 1 %以内で前者と後者の値が同じ値を示しており、それ以外は 60 %以上の相違で後者の値が前者の値を上回っており重力と流体抵抗力が支配的であることを意味している。これらは、重力と流体抵抗力方向に流されている実験結果と傾向が一致している。

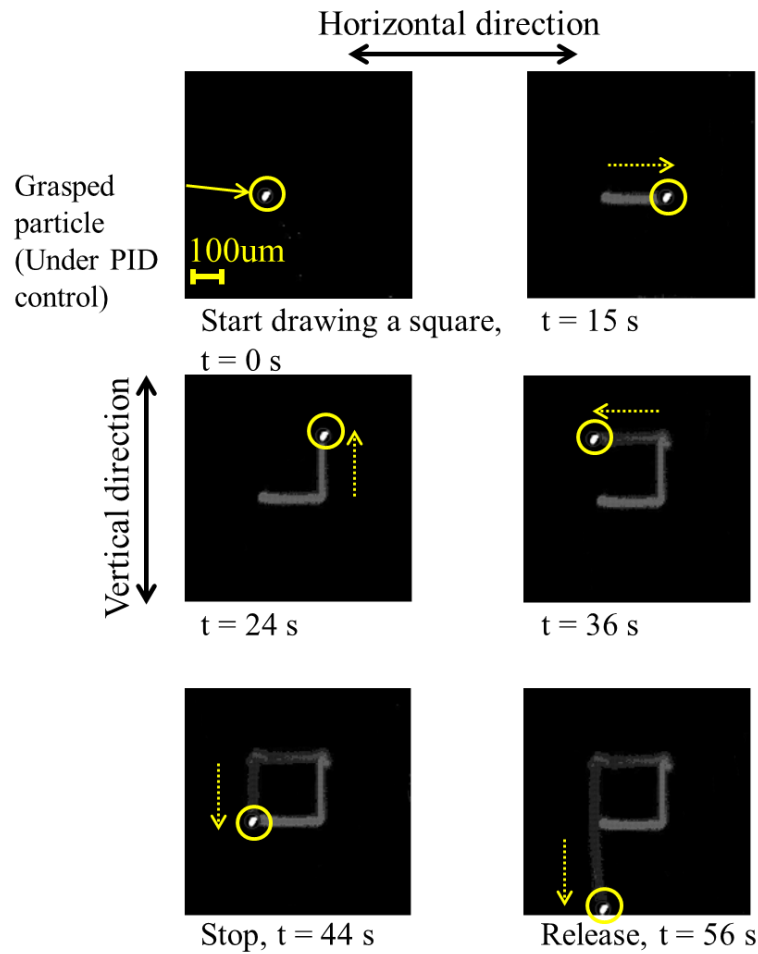


図 4-7 磁性微粒子を矩形軌道で非接触磁気駆動した典型例。非接触磁気把持で任意の磁性微粒子を把持した後、目標座標を水平、垂直方向に変更することで任意の軌道で磁性微粒子を誘導した。図中、丸印で囲った白い粒子が制御対象の磁性微粒子であり、その軌道がわかりやすいように画像処理によって残像をグレー色で画像内に示した。画像一枚目は指定した磁性微粒子を把持した瞬間であり、 $t = 0 - 15$  s で右方向、 $t = 15 - 24$  s で上方向、 $t = 24 - 36$  s で左方向、 $t = 36 - 44$  s で下方向に誘導して出発地点に戻した。出発地点でしばらく把持した後、 $t = 44$  s 以降で把持制御を停止すると、磁性微粒子が重力沈降によって下方に落下した。

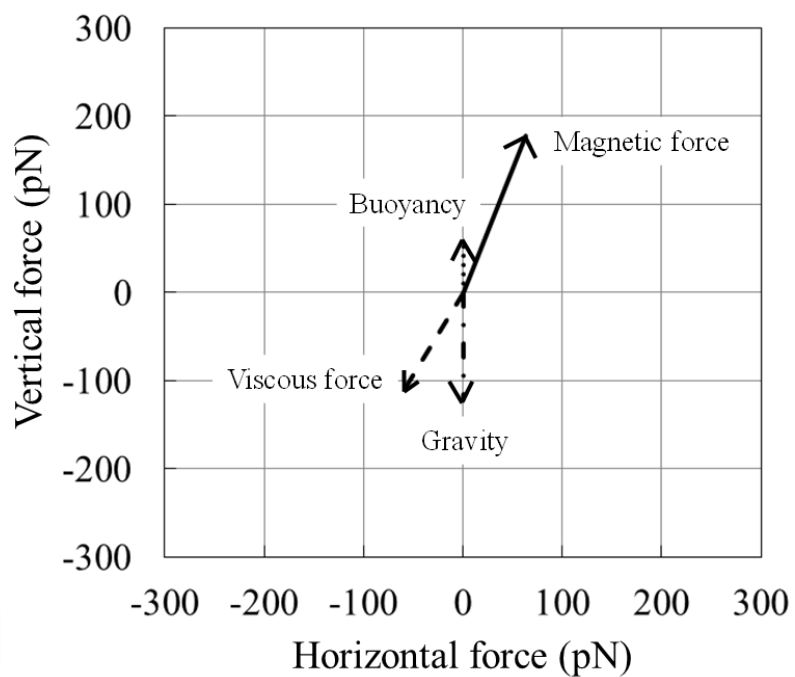


図 4-8 非接触磁気駆動開始前において、非接触磁気把持した磁性微粒子に支配的に作用している力のベクトル図。粘性抵抗力が左下方向に作用している事から流体の流れは左下方向であり、重力と粘性抵抗力を支えるために磁気力は右上方向に作用して釣り合いを保っていた。

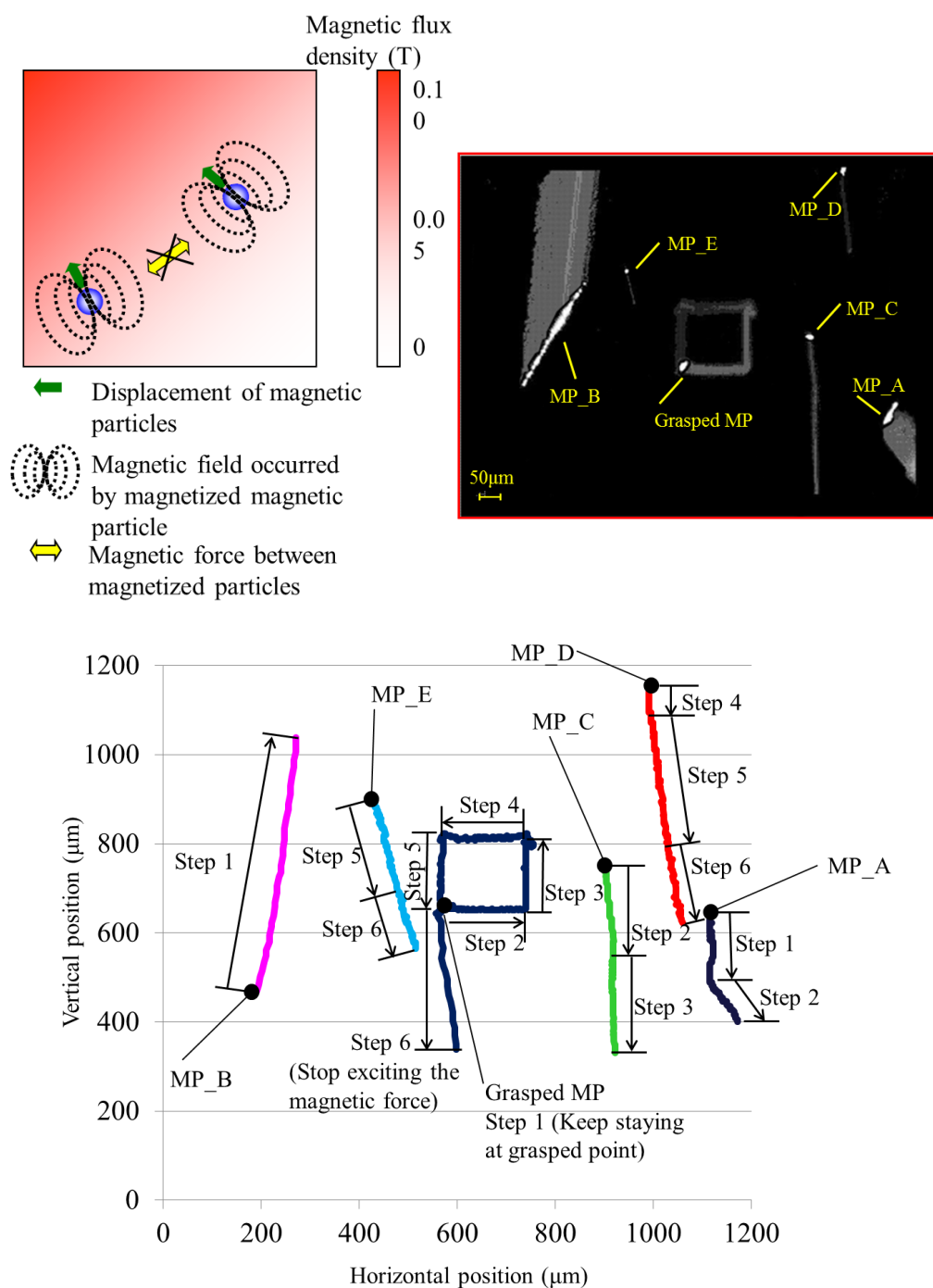


図 4-9 非接触磁気駆動中の磁性微粒子とその周辺の磁性微粒子の軌跡。粒子の軌跡に併記した step 1 – 5 は、非接触磁気駆動中の磁性微粒子のフェーズを表している。すなわち、step 1 で磁性微粒子を把持し、step 2 で右方向に、step 3 で上方向に駆動させた。非接触磁気駆動中の磁性微粒子を除き、粒子長が約 280 μm の粒子 B が step 1 のフェーズで上方向に牽引された以外、その他の粒子 B – E は重力と流体抵抗力の影響で下方に落下した。



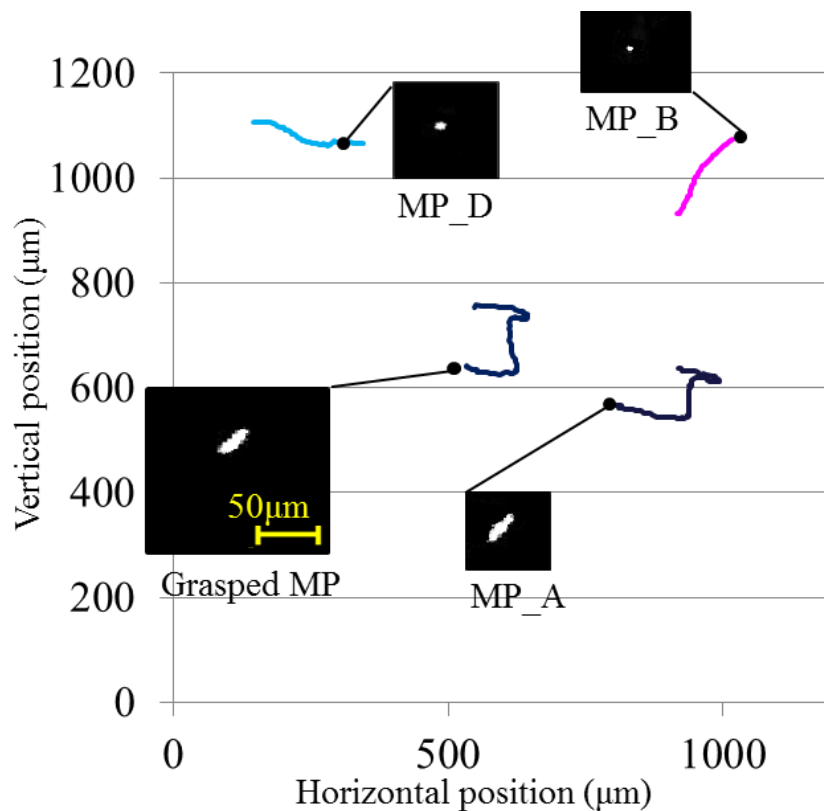


図 4-10 同様な形状、断面積の磁性微粒子が存在している場合の非接触磁気駆動対象粒子とその周辺粒子の軌跡。グラフ内には、把持した磁性微粒子（粒子長さ約 25  $\mu\text{m}$ ）とその周辺の磁性微粒子の画像も合わせて掲載した。粒子径や磁気特性が同程度で、粒子間距離が 100 – 200  $\mu\text{m}$  離れていれば粒子間磁気力の影響なく、個別に把持が可能。

#### 4.3.3.2 非接触磁気駆動時のクラスタ化について

非接触磁気駆動時に生じる磁性微粒子群のチェーンクラスタ化について把握するために、磁界一定の条件を一例として、その間の磁性微粒子の磁気的なチェーンクラスタ化の挙動を観察した。図 4-11 には、磁界一定に保持した状態で開始直後と 20 s 後における磁性微粒子の画像（白色）を、図 4-12 には磁性微粒子がクラスタ化する過程を軌跡で示した。画面左下の磁性微粒子 A は、作用している力がバランスしており一定の場所に静止している。一方で、画面右側に存在する長軸方向の長さが 23、31、32  $\mu\text{m}$  である 3 つの磁性微粒子 B, C, D はその場に静止することなく周囲の磁性微粒子との距離が約 100  $\mu\text{m}$  に近接すると粒子間磁気力で順次チェーン状にクラスタ化していく状態が示されている。また、画面左上に存在する長軸方向長さが 22、31  $\mu\text{m}$  である 2 つの磁性微粒子 E, F もチェーン状にクラスタ化

している。この例では、磁界を右上方向に作用させているため、いずれの磁性微粒子もチェーンクラスタ化の前後で変わらず同じ方向に配向した。また、磁性微粒子 A がバランスし静止した  $5.3 \times 10^3 \text{ A/m}$  の磁界下において、最大で  $85 \text{ }\mu\text{m}$  の長さのチェーン状クラスタに成長する状態が観察された。ドラッグデリバリーなど血管中で粒子径を小さく保ちスムーズに流動させるためには、磁気制御によってチェーンクラスタ化する磁性微粒子群の切断あるいは分散方法が必要と考えられる。そこで、このような磁気制御中にチェーンクラスタ化した磁性微粒子群を対象として、磁氣的なクラスタ切断の可能性について次節で詳細に検討を行った。

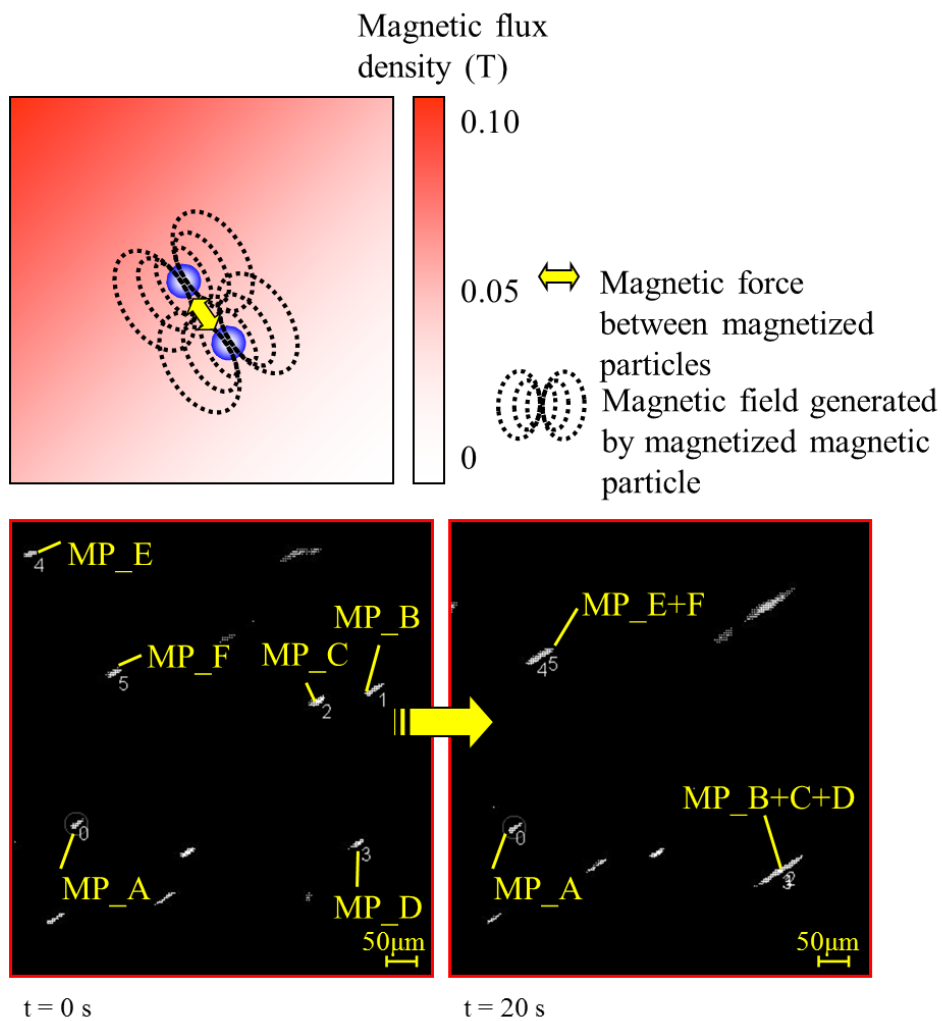


図 4-11 磁性微粒子の磁気的なチェーンクラスタ化の挙動の典型例。磁界一定の 20 s 間における磁性微粒子の画像(白色)を示す。画面左下の磁性微粒子 A は、作用している力がバランスしており一定の場所に静止している。一方で、画面右側に存在する長軸方向の長さが 23、31、32  $\mu\text{m}$  である 3 つの磁性微粒子 B, C, D は最終的にチェーンクラスタ化している。

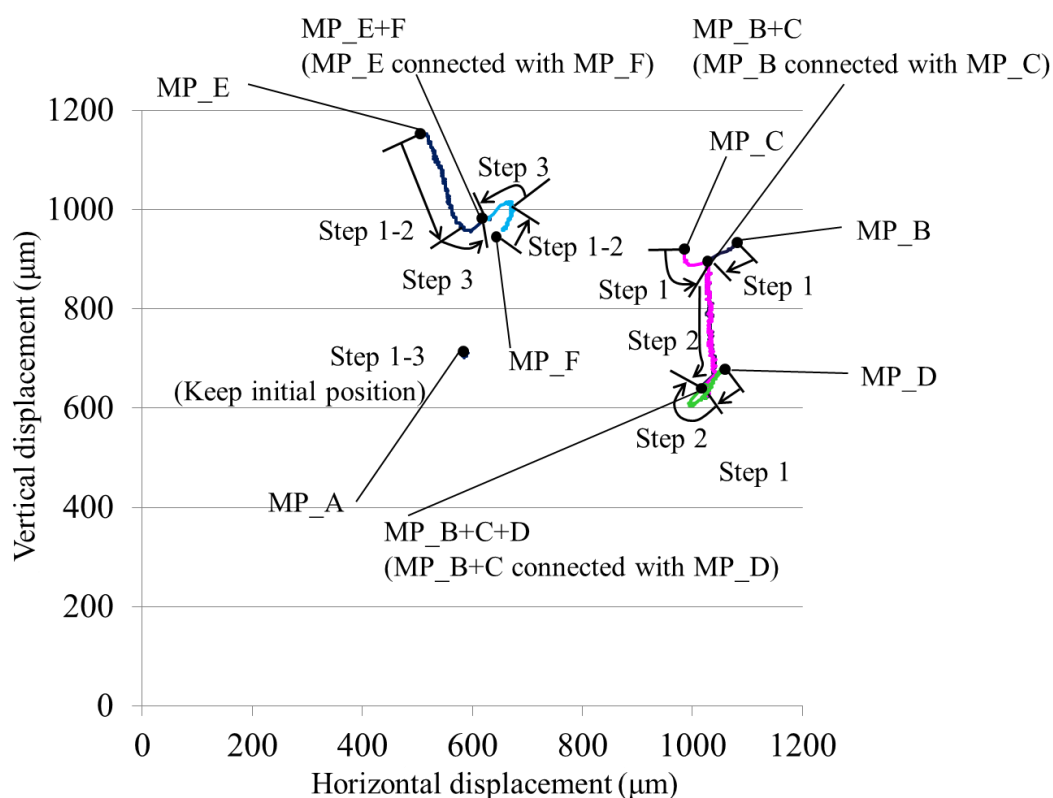


図 4-12 磁性微粒子の磁気的なチェーンクラスタ化の過程を示す。磁界一定の 20 s 間における磁性微粒子の軌跡を示した。画面右側に存在する長軸方向の長さが 23、31、32  $\mu\text{m}$  である 3 つの磁性微粒子 B、C、D はその場に静止することなく周囲の磁性微粒子との距離が約 100  $\mu\text{m}$  に近接すると粒子間磁気力で順次チェーン状にクラスタ化していく状態が示されている。また、磁性微粒子 E、F も同様にチェーンクラスタ化していく。

## 4.4 クラスタ化磁性微粒子の磁気分離

第 3 章においては、粒子結合時に粒子間に作用する磁気力の大きさや影響範囲について評価を行った。また、4.2 節では流体抵抗や近接粒子との粒子間磁気力が支配的な場において操作に必要な磁気力の大きさについて評価し、さらに近接粒子の影響範囲について 0.5 mm 以上離れている場合には重力に比べて著しく小さい力しか作用しないことが試験結果より示された。

4.3 節では磁性体そのものや、他の物質に磁性体を付加して磁気力で誘導する場合を想定し、マイクロオーダーの磁性微粒子を対象とした流体中における磁気ガイドについて実証

した。一方で、磁気制御による手法を用いる限り、粒子把持中や粒子操作中に周辺に存在する磁性微粒子との間で粒子凝集が生じる可能性についても示した。以上から、近接粒子の影響範囲や作用する方向を本研究が提案する実験的手法で的確に把握し必要最小限の磁気力で制御すると、限定された粒子濃度（粒子間距離）の範囲においては、粒子間の相対位置を考慮した移動経路の選択を行うことで、磁気ガイド時の粒子結合を回避できる可能性を示した。

一方で磁性微粒子制御の応用先の一つであるドラッグデリバリーでは、治療開始時の治療対象地点への粒子凝集は目的とする挙動であるが、治療後には不要になった粒子を分散させて血管に詰まらせることなく、体外に排出させる必要がある。そこで本節では、一度結合した磁性微粒子クラスタに交番磁界を作用させて流体抵抗によるせん断力を与えることで再度分離させる条件について検討を行った。

#### 4.4.1 クラスタ化磁性微粒子の磁気分離条件の探索方法

磁気分離条件の探索方法は次の通りとする。実験装置は図 3-21 で示した流速制御可能な磁性微粒子用の磁気駆動装置を用いる。上流側のタンクに純水と磁性微粒子を満たしておく。粒子循環用ポンプを駆動しシリコンチューブを介して石英ガラスセルに磁性微粒子を供給する。次に、磁性微粒子制御装置を起動させ高速カメラを介して粒子画像を 100 fps で連続的に取得する。モニタ用の PC で磁性微粒子制御装置へのインターフェースプログラムを起動し、非接触磁気把持対象とする磁性微粒子の粒子径（必要に応じてその範囲）と初期把持位置を入力する。粒子把持プログラムを実行開始すると、目標値として設定した粒子径をもとに候補となる粒子群候補が探索されマーキングされるため、チェーンクラスタ化した磁性微粒子群がマーキングされたら、「把持開始」を選択する。チェーンクラスタ化した磁性微粒子群を把持できたら、あらたな粒子の供給は不要であるため粒子循環ポンプの駆動を停止させ流体の強制循環を終了する。次に、前節で示した非接触磁気マニピュレーション方法をつかって観測画面上端付近にチェーンクラスタ化した粒子群を移動させる。移動が完了したら、PID 制御を停止させ、すなわち非接触磁気把持していた磁性微粒子群を放し画面下方にむかって重力で落下させる。重力による落下が始まったら、重力沈降を助長させないよう所定の周波数の電流を水平方向の電磁石 2 台のみに交互に通電し、左右方向の交番磁界を落下している磁性微粒子群に作用させる。画面下端付近に達したら、非接触磁気把持の PID 制御を再開させて当初の座標（画面上端付近）に再び引き上げ把持する。この方法によって、磁気力と周波数とパルス幅をパラメータとして、同一の磁性微粒子群にさまざまな条件の交番磁界を作用させることで一度結合した磁性微粒子群のチェ

ーン切断の条件を把握する。作用させる磁界の周波数は  $0.5 - 20 \text{ Hz}$  とし、電磁石コイルに通電する電流の振幅は最大で  $18 \text{ A}$  とした。

図 4-13 に微小クラスタ化した磁性微粒子群に対して交番磁気力を作用させた一例を示した。上側のグラフは、非接触磁気把持対象の磁性微粒子に対して交番磁気力を作用させたときのトラッキング対象の磁性微粒子の軌跡を示している（ $x$  軸は水平方向位置、 $y$  軸は垂直方向位置）。図中の 1 で非接触磁気把持されており、2 で PID 制御を停止し、3 で交番磁気力を作用させると左右方向に粒子座標が振動する様子がとらえられ、5 で再び非接触磁気把持のための PID 制御を開始すると、当初の 1 の位置に戻って非接触磁気把持される。下図には重力、浮力、垂直方向磁気力、水平方向磁気力の時間変化が示されている。なお、左軸は垂直方向の力を粒子体積で正規化した値を、右軸は水平方向の力を粒子体積で正規化した値を示している。左図と同様に、1 番の時間で非接触磁気把持の PID 制御が終了したことで垂直方向力が 0 となり、代わって 3 番で水平方向力が矩形波状に作用を開始している。5 番で非接触磁気把持の PID 制御を再開すると、水平と垂直方向磁気力が急激に大きくなり、 $1 - 3 \text{ s}$  程度で当初の位置に再び非接触磁気把持される。

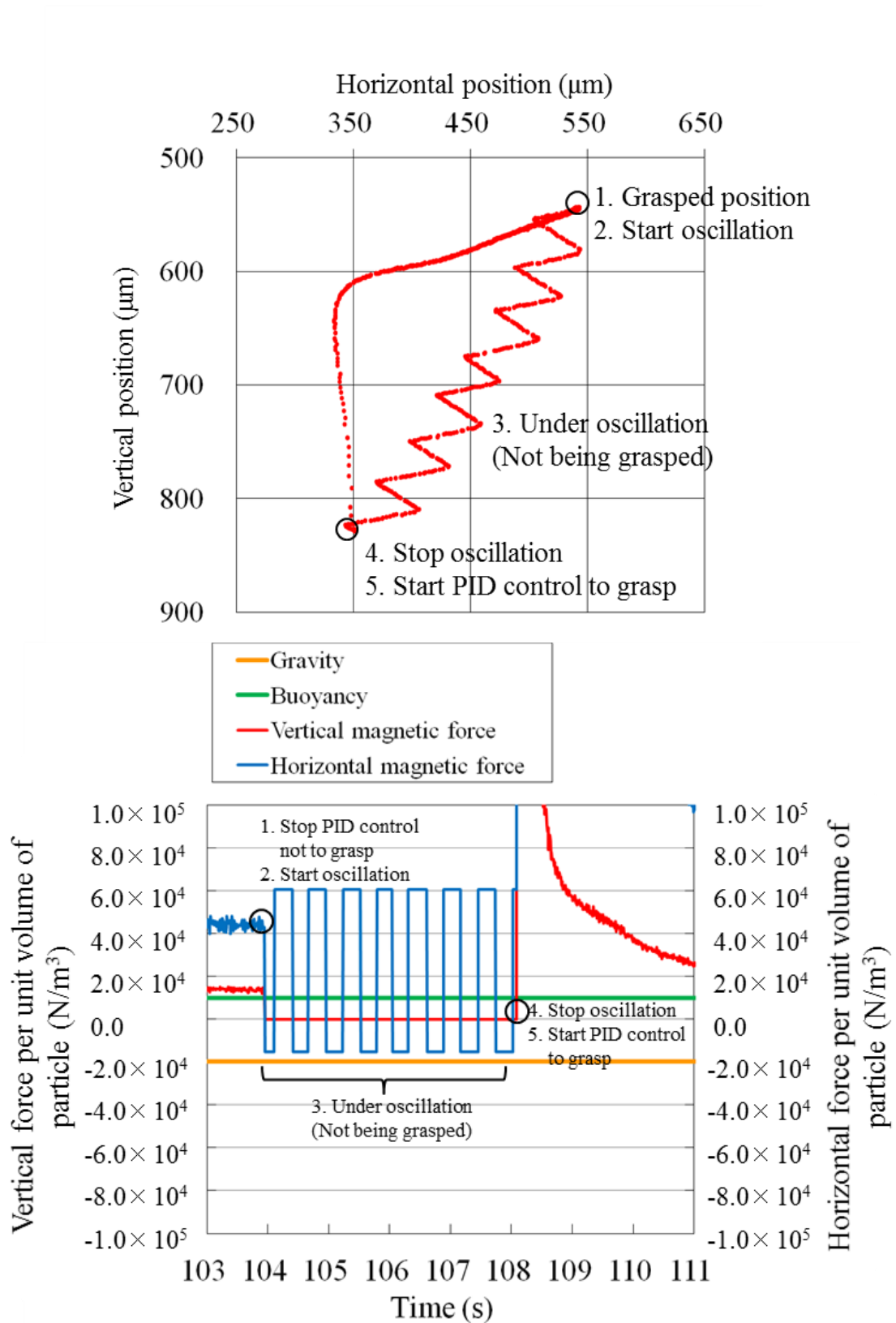


図 4-13 2 Hz で振動させた場合における、微小クラスタ化した磁性微粒子群の軌跡 (上)、及び作用力の時間変化(下)

#### 4.4.2 クラスタ化磁性微粒子の磁気分離結果

微小クラスタ化した磁性微粒子群に対して、前述した方法で粒子の振れ幅やクラスタ形状について観察した。なお、本項の試験では、交番磁界に対するクラスタ切断性を効率よく確認するために、非接触把持粒子以外にも周辺に同程度の大きさのクラスタ化した磁性微粒子群が存在している状態で行った。この状態で実施することで、前節で示した複数粒子に対する磁気ガイドのように交番磁界を複数に与えたり、再び非接触磁気把持したりすることが可能となる。図 4-13～4-24 に、2 – 20 Hz の交番磁界を順次、同一磁性微粒子に作用させた結果を示す。

図 4-13 は 2 Hz の交番磁界を作用させた場合の粒子軌道グラフと作用力の時間変化グラフ、図 4-14 に非接触磁気把持対象の磁性微粒子群の水平と垂直方向位置の時間変化、図 4-15 にはその条件下でのトラッキング対象の磁性微粒子の軌跡と、その周辺の粒子群挙動の代表的な画像を示す。トラッキング対象の磁性微粒子群（図 4-15 黄色のマーク）、及びその周辺の磁性微粒子群（図 4-15 赤色のマーク）の振幅はそれぞれ約 40、120  $\mu\text{m}$  であった。2 Hz で  $1.5 \times 10^4 - 6 \times 10^4 \text{ N/m}^3$  の交番磁界で振動させた条件では磁性微粒子群のクラスタ形状に切断等の変化は見られなかった。観測画面下端付近までトラッキング対象の磁性微粒子群が落下したところで、再び非接触磁気把持のために PID 制御を再開させて図 4-15 の一枚目の位置に戻した。これによって周辺の磁性微粒子群も同じ位置ではないものの、観察視野上部へ戻される様子が観察された。



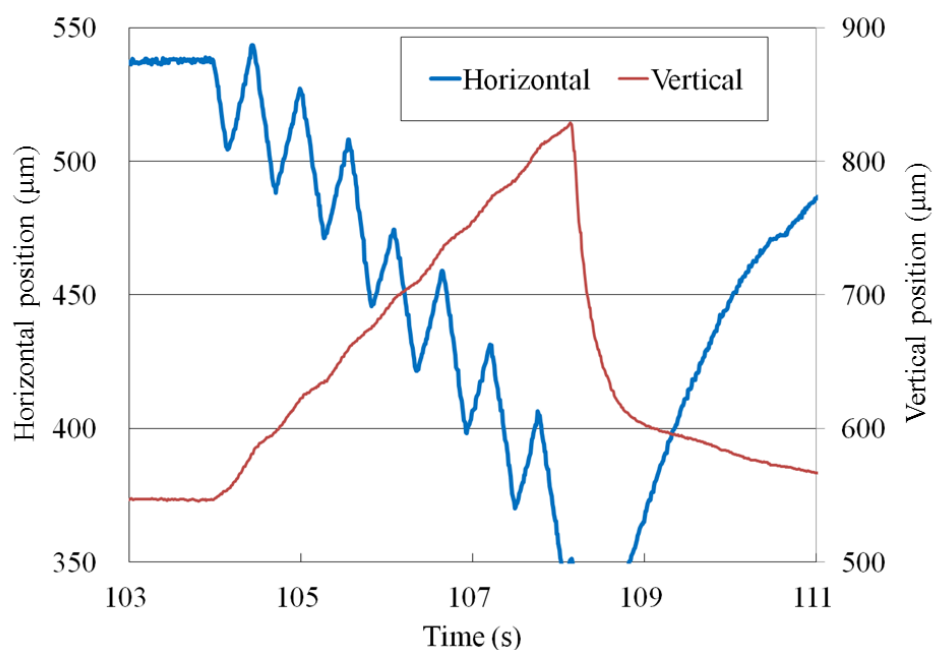


図 4-14 磁性微粒子群の水平、垂直方向の時間変化 (2 Hz)

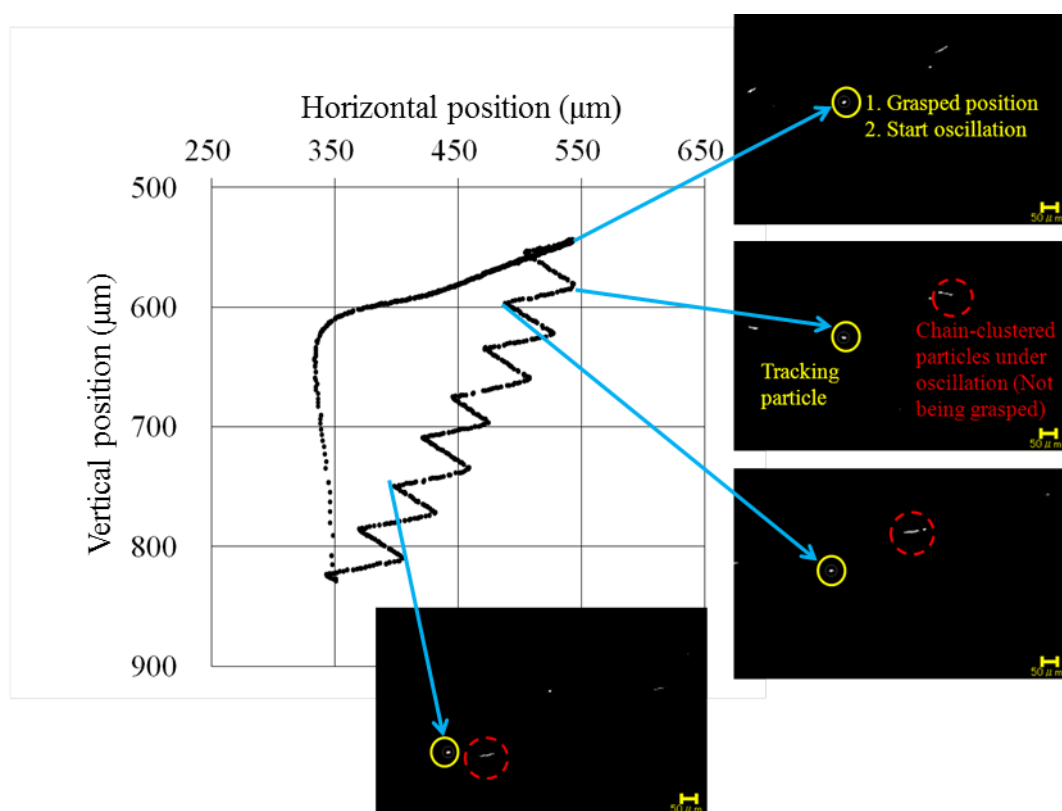


図 4-15 微小クラスタ化した磁性微粒子群の連続画像 (2 Hz)

次に、4 Hz で振動させた場合の結果を図 4-16～4-18に示す。図 4-16 には非接触磁気把持対象の磁性微粒子群の作用力の時間変化を、図 4-17 には磁性微粒子群の水平と垂直方向の位置の時間変化が示されている。4 Hz の場合の非接触磁気把持対象の磁性微粒子群の水平方向振幅は約 25  $\mu\text{m}$  であった。図 4-18 にはトラッキング対象の磁性微粒子の軌跡と磁性微粒子群の代表的な画像が示されている。2 Hz では見られなかったが、4 Hz の条件下では周辺の磁性微粒子群のクラスタが連続画像 3 枚目で切断されている状況が観察された。しかしながら、次の画像で再度結合する様子も観察された。4 Hz の条件では連続画像 6 枚目～8 枚目でもクラスタ切断と再結合が観察されており、交番磁界がクラスタ切断に効果があることが確かめられた。なお、作用させている単位体積当たりの交番磁気力は 2 Hz の場合と同様に  $1.5 \times 10^4 - 6 \times 10^4 \text{ N/m}^3$  であり、今回クラスタ切断された磁性微粒子群は 2 Hz の場合に着目していた磁性微粒子群と同じものである。この磁気力は、磁気把持の時以上に磁化させてしまうことを避けるため、粒径 20  $\mu\text{m}$  の粒子が磁気把持に必要な磁気力と同程度となるように選んでいる。

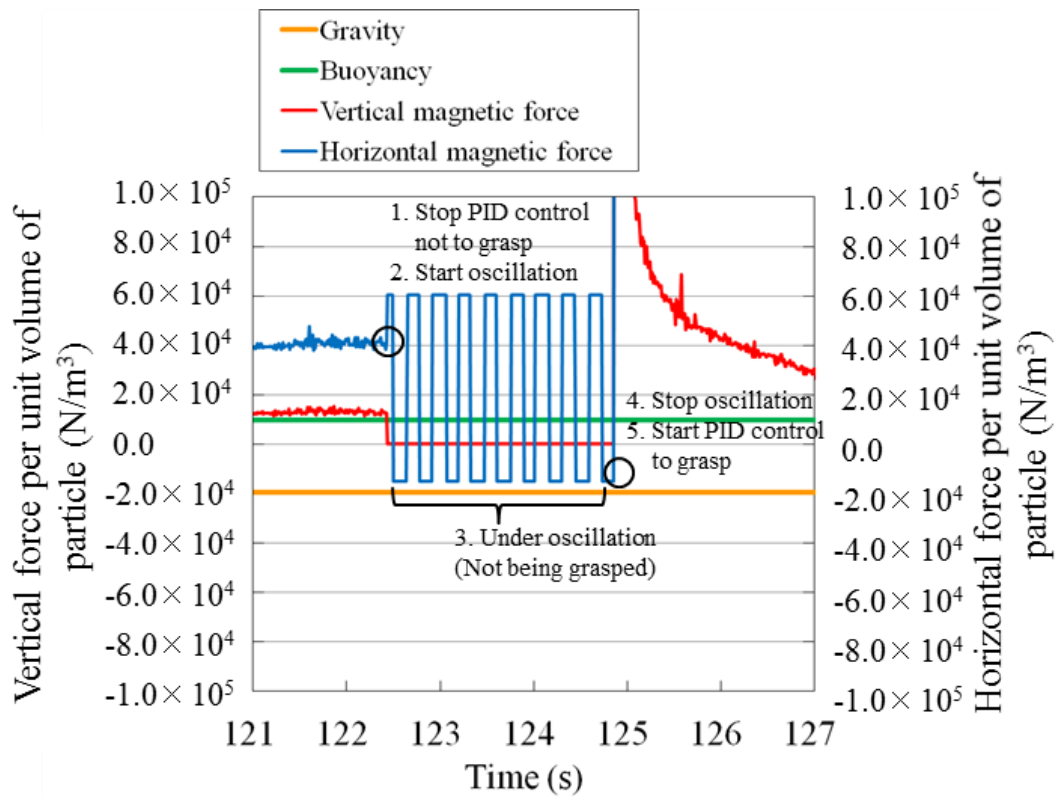


図 4-16 4 Hz で振動させた場合における、非接触磁気把持対象の磁性微粒子群の作用力の時間変化

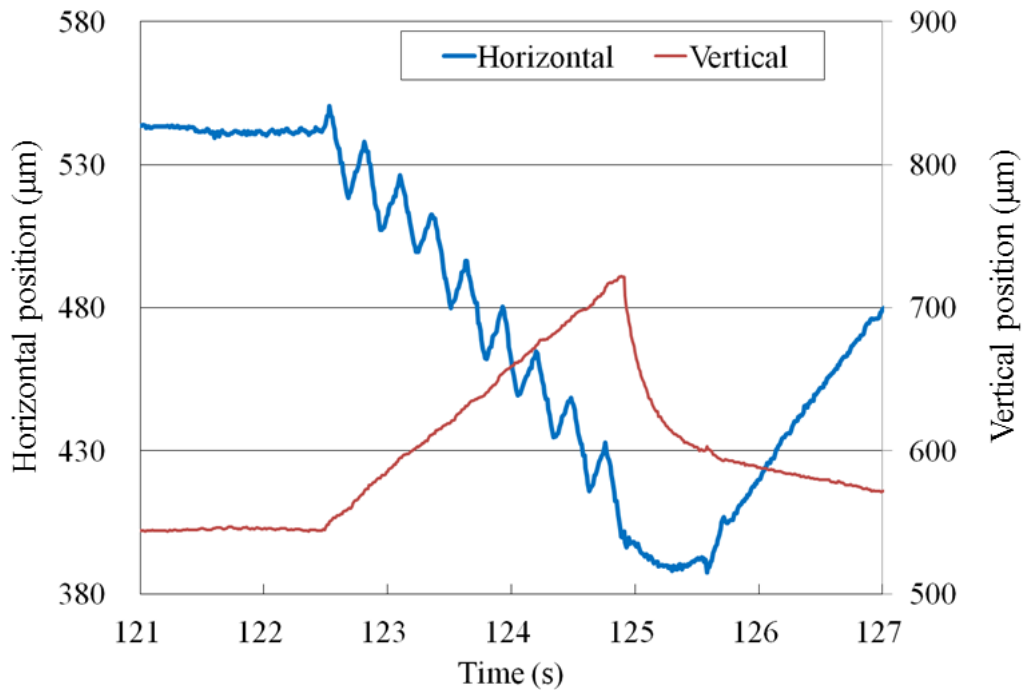


図 4-17 4 Hz で振動させた場合における、非接触磁気把持対象の磁性微粒子群の水平と垂直方向の位置の時間変化

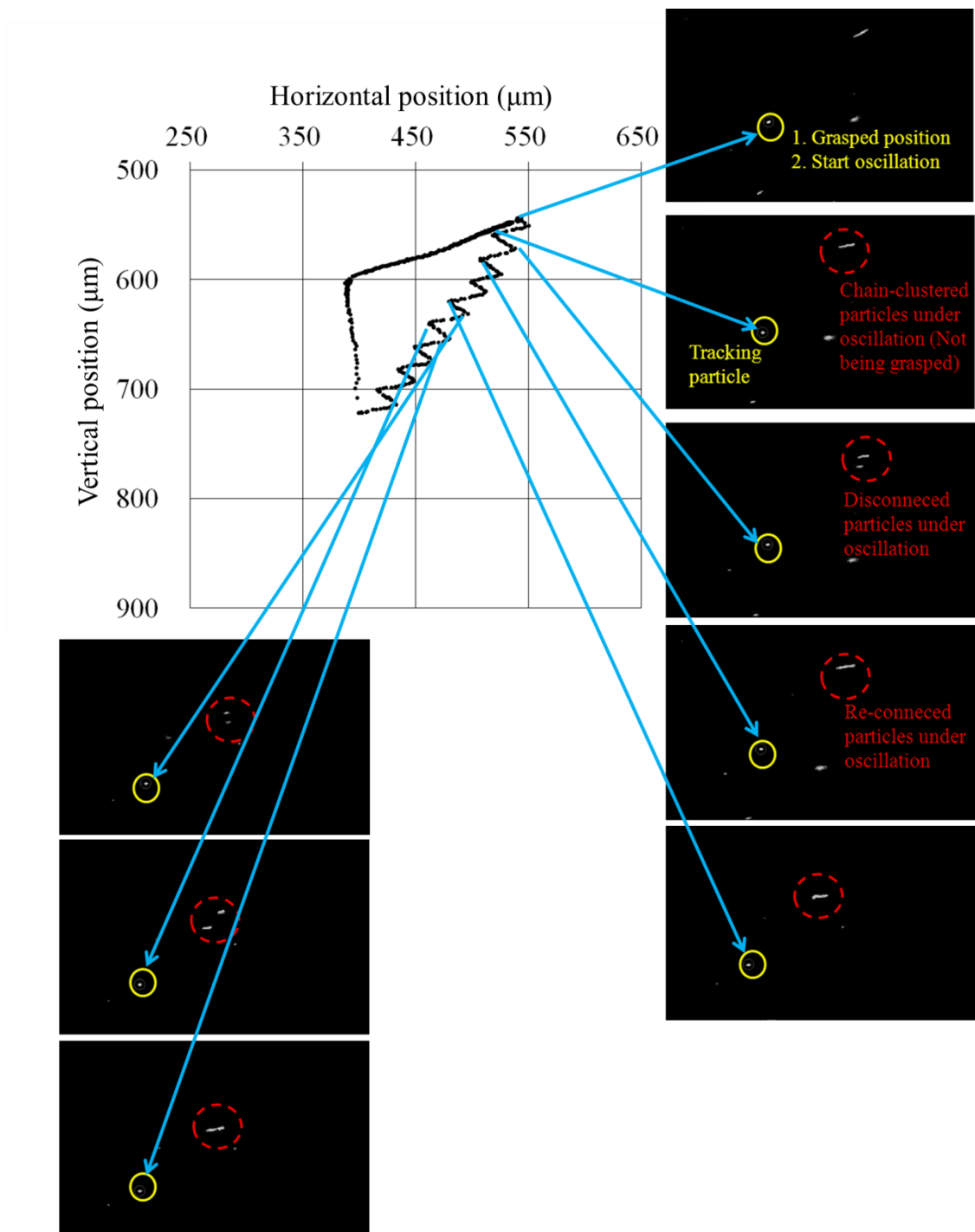


図 4-18 微小クラスタ化した磁性微粒子群の連続画像 (4 Hz)

さらに、10 Hz と 20 Hz で振動させた場合の結果を図 4-19～4-24 に同様に示した。図 4-19 と 4-22 には非接触磁気把持対象の磁性微粒子群の作用力の時間変化、図 4-20 と 4-23 にはそれらの水平と垂直方向の位置の時間変化が示されており、図 4-21 と 4-24 にはトラッキング対象の磁性微粒子の軌跡と磁性微粒子群の代表的な画像が示されている。10 Hz の場合の非接触磁気把持対象の磁性微粒子群の振幅は約  $9\ \mu\text{m}$  であり、20 Hz の場合はおよそ  $3\text{--}5\ \mu\text{m}$  であった。なお、20 Hz の場合はサンプリング周期が 10 ms であるため振幅波形がうまく再現できていない。10 Hz と 20 Hz に関しては、クラスタ切断が顕著に見られる一方で再結合の割合が減少した。また、再結合時に結合の位置関係が変わる様子も確認された。なお、作用させている単位体積当たりの交番磁気力は 2 – 4 Hz の場合と同様に  $1.5 \times 10^4\text{--}6 \times 10^4\ \text{N/m}^3$  であり、今回もクラスタ切断された磁性微粒子群は 2 – 4 Hz の場合に着目していた磁性微粒子群と同じものである。

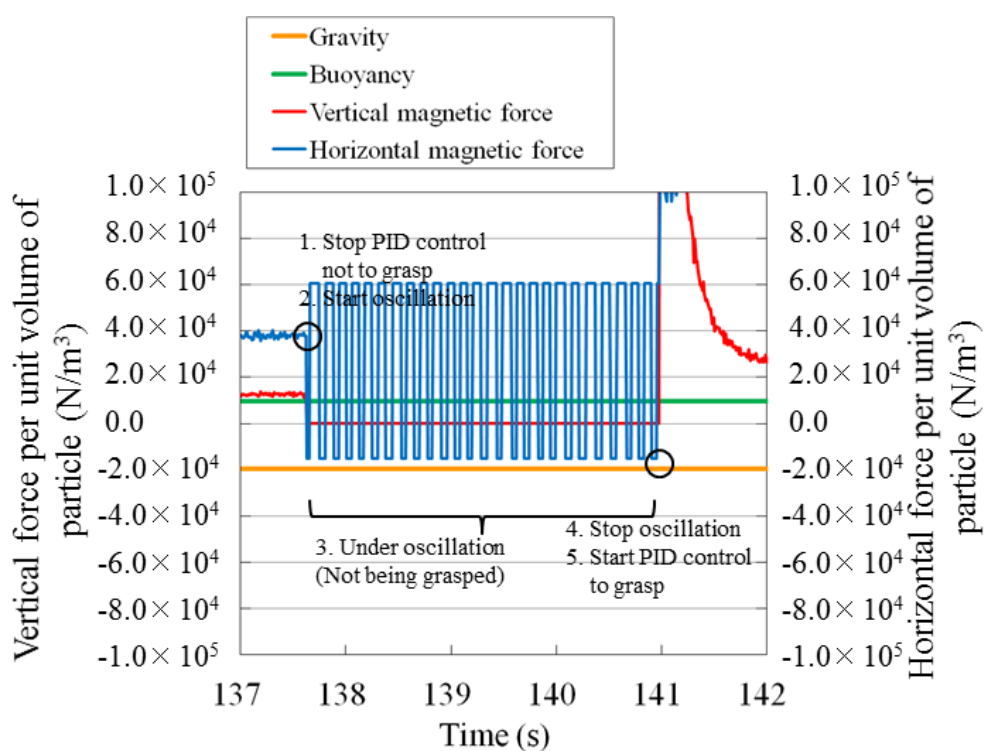


図 4-19 10 Hz で振動させた場合における、非接触磁気把持対象の磁性微粒子群の作用力の時間変化

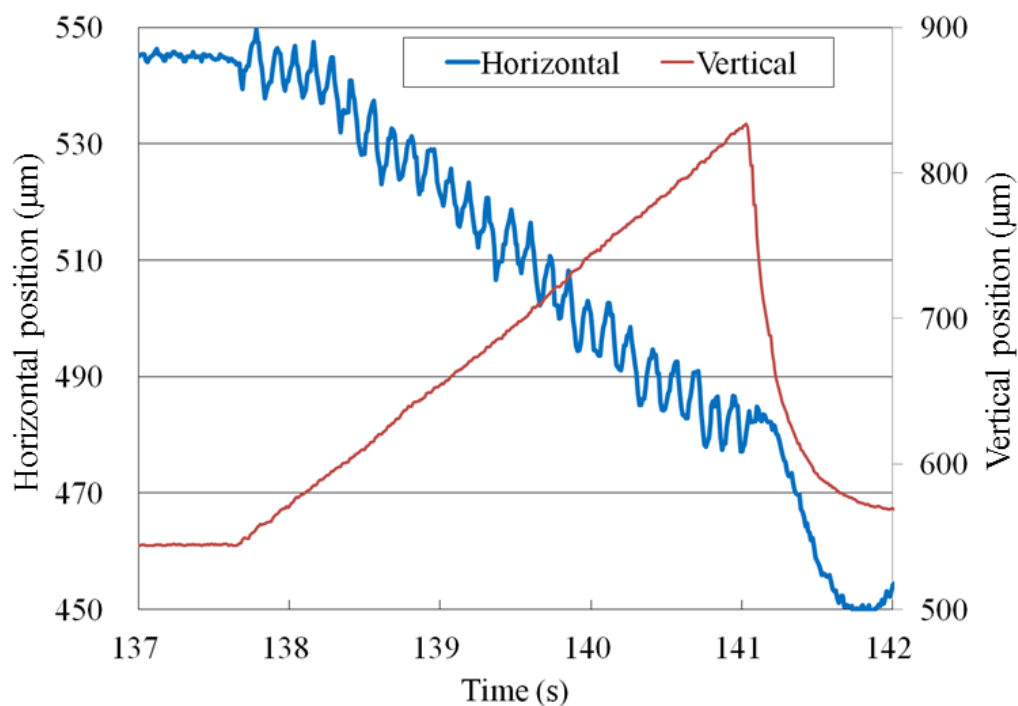


図 4-20 10 Hz で振動させた場合における、非接触磁気把持対象の磁性微粒子群の水平と垂直方向の位置の時間変化

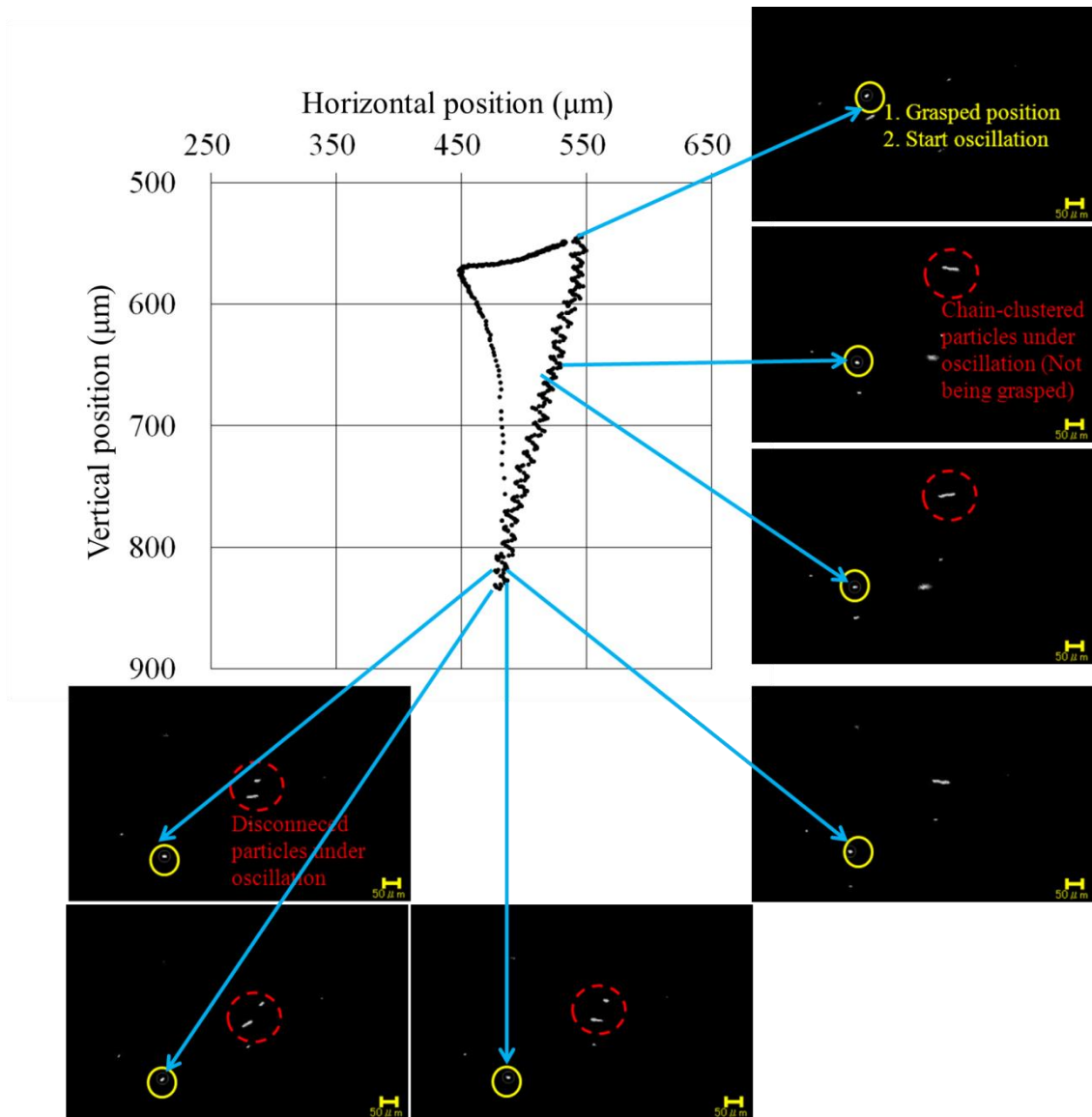


図 4-21 微小クラスタ化した磁性微粒子群の連続画像 (10 Hz)

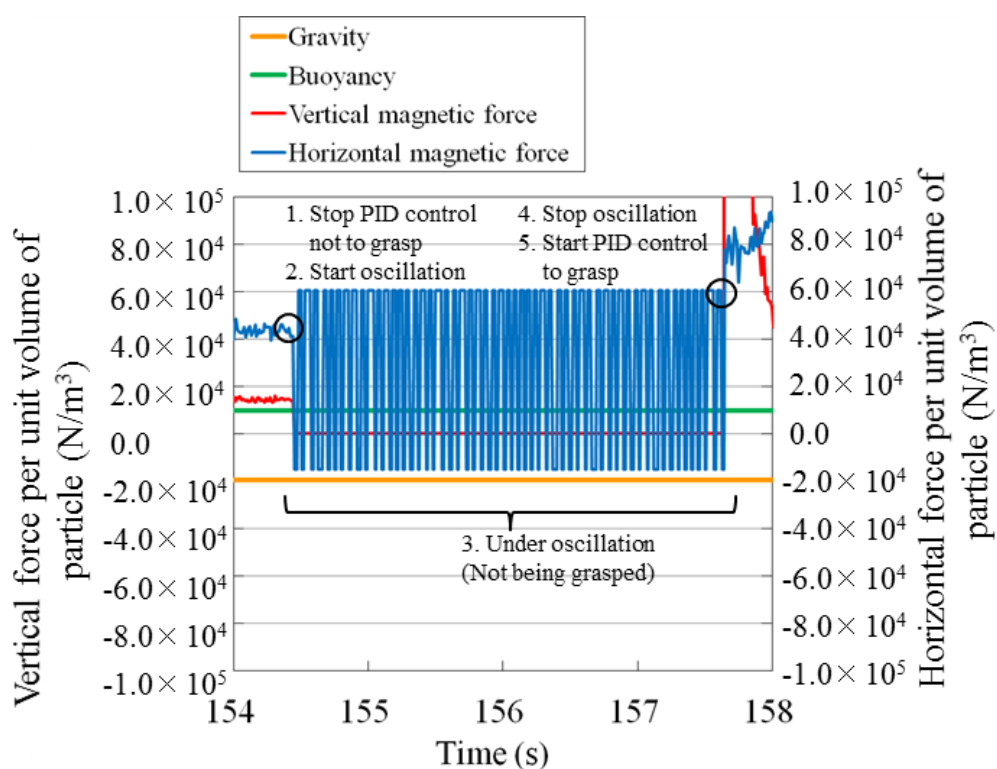


図 4-22 20 Hz で振動させた場合における、非接触磁気把持対象の磁性微粒子群の作用力の時間変化

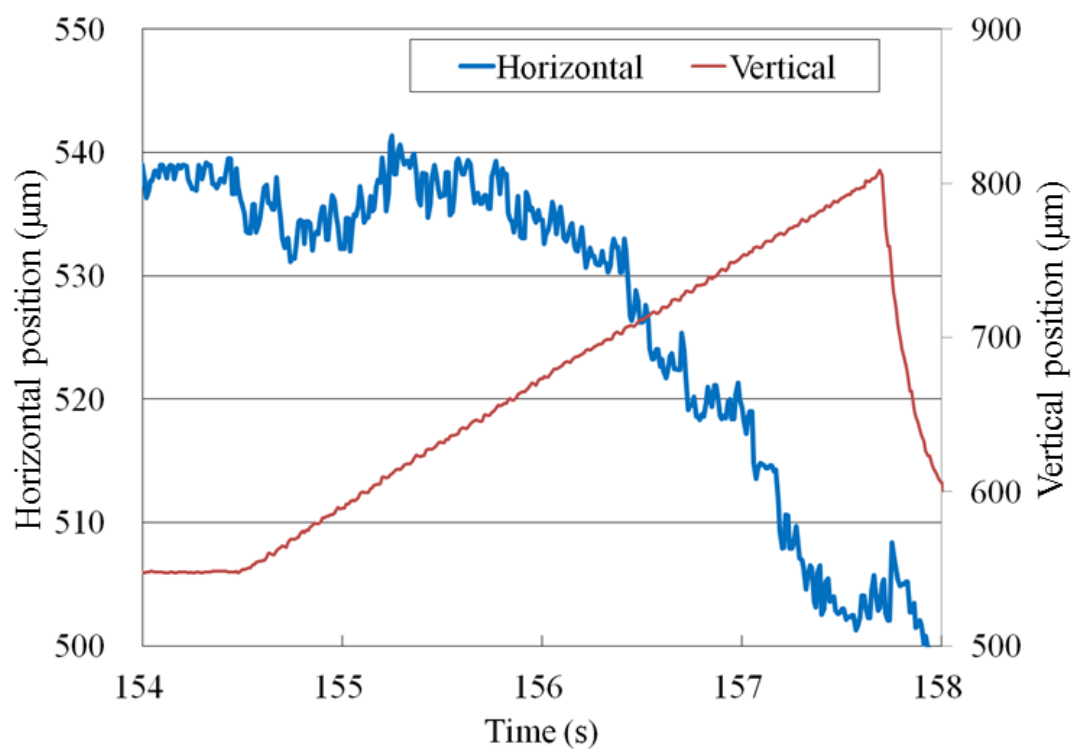


図 4-23 20 Hz で振動させた場合における、非接触磁気把持対象の磁性微粒子群の水平と垂直方向の位置の時間変化



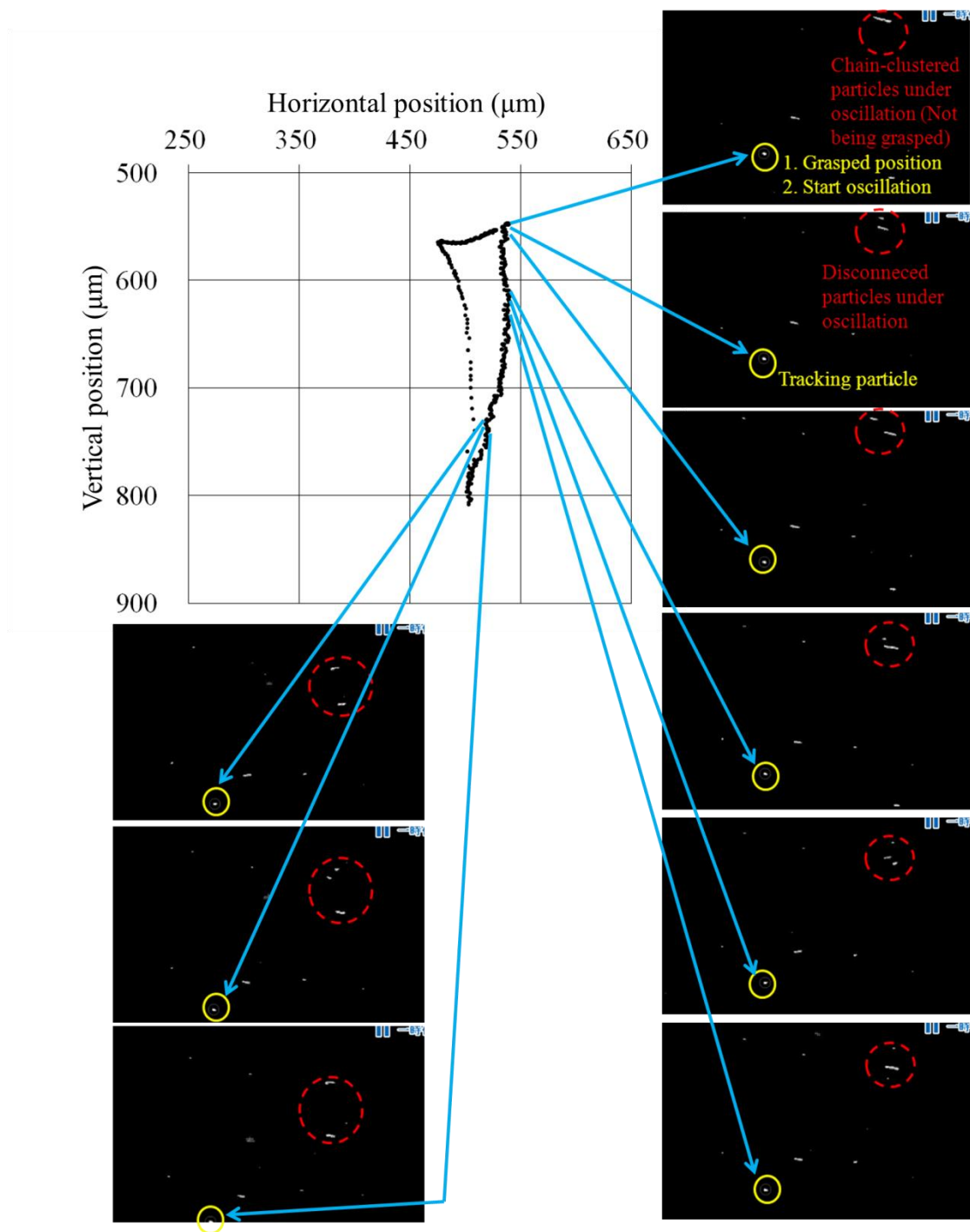


図 4-24 微小クラスタ化した磁性微粒子群の連続画像 (20 Hz)

ここで、非接触磁気把持しているクラスタ化した磁性微粒子群に対して前述のクラスタ切断条件を適用し、その効果の再現性について確認を行った。今回の試験においても交番磁界を作用させる対象は全ての試行において同じ磁性微粒子群である。

図 4-25 には試行一回目のクラスタ切断対象の磁性微粒子群の軌跡と代表的な画像を示し、図 4-26 には図 4-25 と同じクラスタ化した磁性微粒子群を対象とした試行 2 回目～4 回目の磁気分離試験の連続画像を示した。図 4-28～4-30 にはそれぞれの試行回数時の非接触磁気把持対象の磁性微粒子群の作用力の時間変化を示した。試行 1 回目～3 回目ではいずれも 10 Hz で作用させる力としては  $1.5 \times 10^4 - 6 \times 10^4 \text{ N/m}^3$  で非接触磁気把持対象の磁性微粒子群のクラスタ切断が確認された。試行 1 回目～3 回目ではいずれもクラスタ切断後に再結合する様子が見られた。試行 3 回目では、クラスタ切断後に異なった位置関係で再結合しており、そのクラスタ状態では今回の作用力条件ではクラスタ切断を確認できなかった（試行 4 回目）。

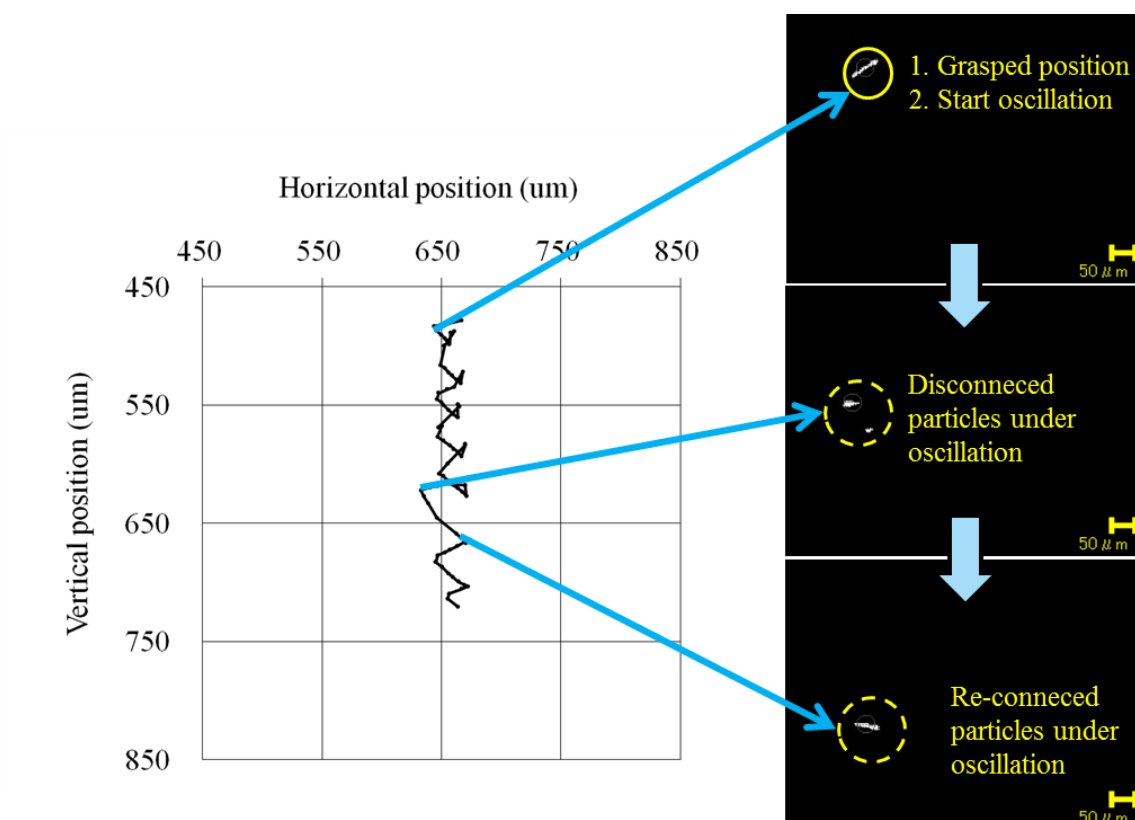


図 4-25 微小クラスタ化した磁性微粒子群の磁気分離再現性試験画像(10 Hz、試行一回目)

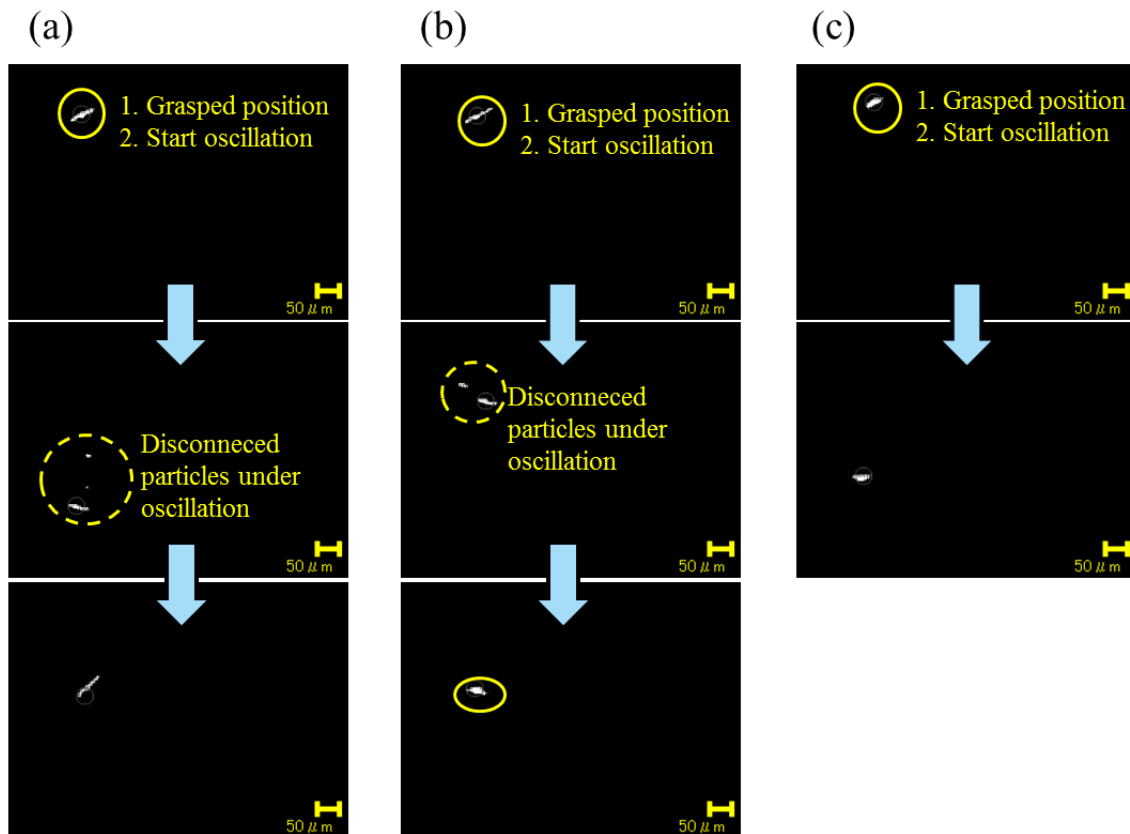


図 4-26 微小クラスタ化した磁性微粒子群の磁気分離再現性試験画像 (10 Hz)。ここで、図 4-25 と同じ微小クラスタ化した磁性微粒子群を対象とした(a)は試行 2 回目、(b)は試行 3 回目、(c)は試行 4 回目の磁気分離結果を表している。試行 2 回目と試行 3 回目は、試行 1 回目と同様に画像二枚目で微小クラスタ化した磁性微粒子が二つに分裂している。しかしながら約 1 s 間、同じ振幅の振動を与えた結果、一度は分裂するも直後に再結合する。試行 4 回目では、異なるクラスタ形状に結合したため、同じ振動条件では分離していない。

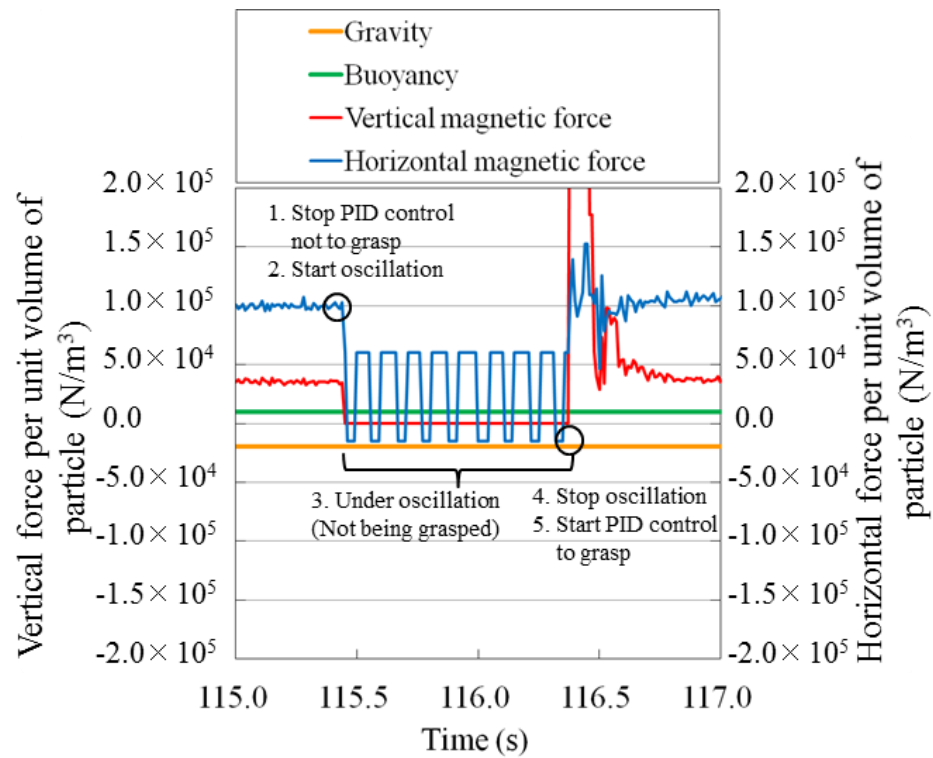


図 4-27 10 Hz で振動させた場合(図 4-25)における、非接触磁気把持対象の磁性微粒子群の作用力の時間変化(試行一回目)。115.5 s まで非接触磁気把持のために微小クラスタ化した磁性微粒子群を PID 制御で把持し、その後非接触磁気把持を停止(1)。すぐに左右方向のみに交番磁気力を約 1 s 間作用させる(2)。微小クラスタ群は自然落下するため、観測画面下端まで来たら励磁を停止させ(4)、視野内に引き戻すために再度、同じ磁性微粒子群に対して非接触磁気把持を実施する(5)。これを試行 1 回目～試行 4 回目まで繰り返し実施する。

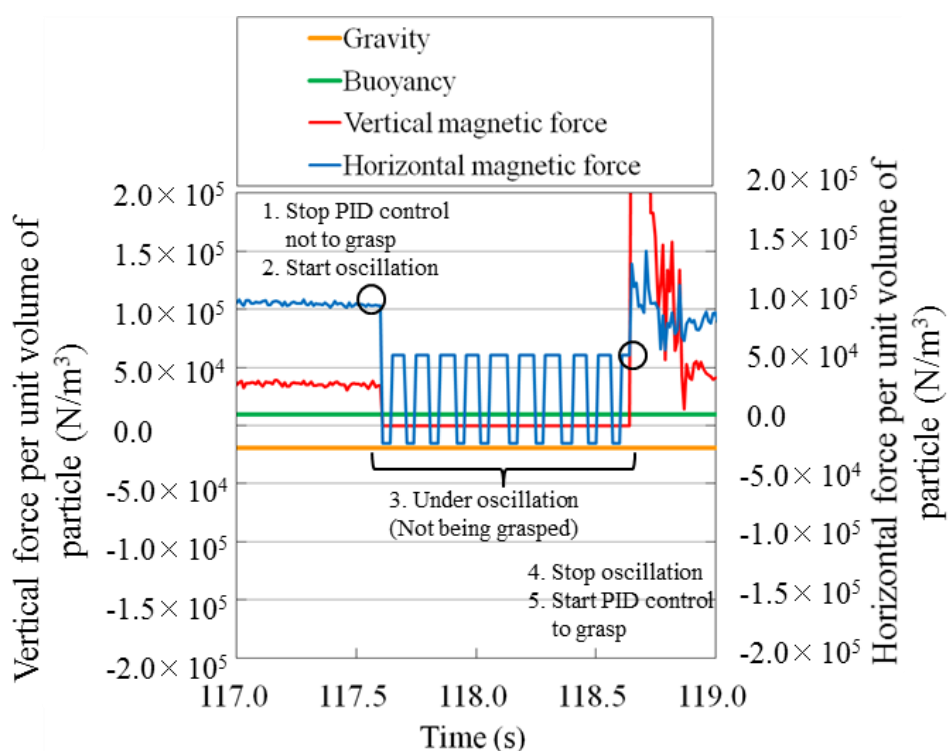


図 4-28 10 Hz で振動させた場合(図 4-26(a))における、非接触磁気把持対象の磁性微粒子群の作用力の時間変化(試行 2 回目)

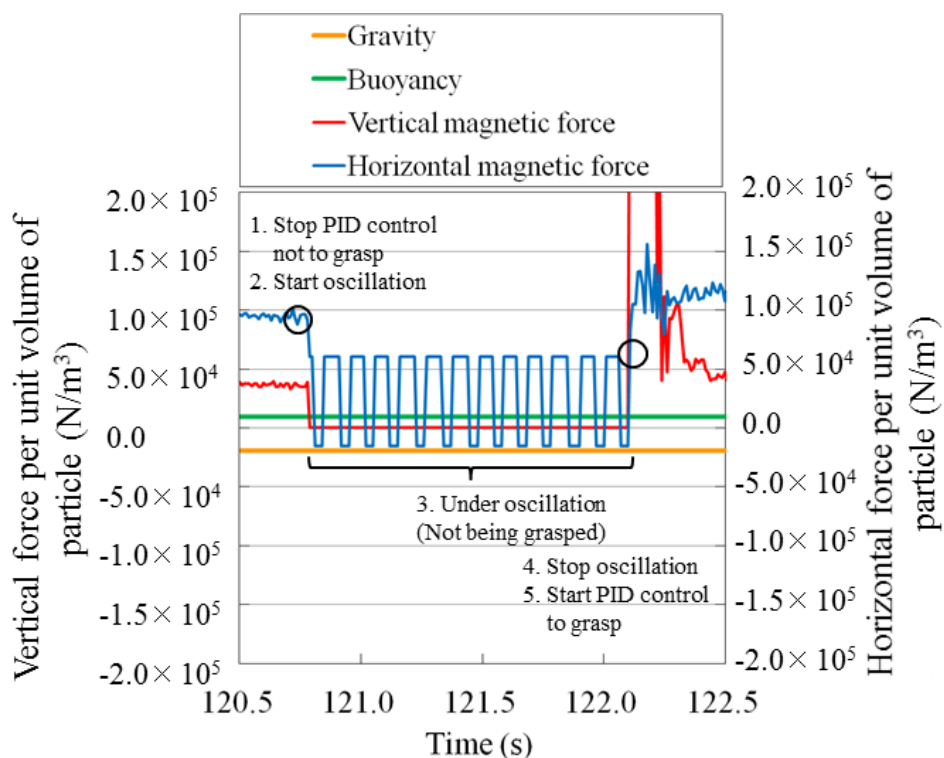


図 4-29 10 Hz で振動させた場合(図 4-26(b))における、非接触磁気把持対象の磁性微粒子群の作用力の時間変化(試行 3 回目)

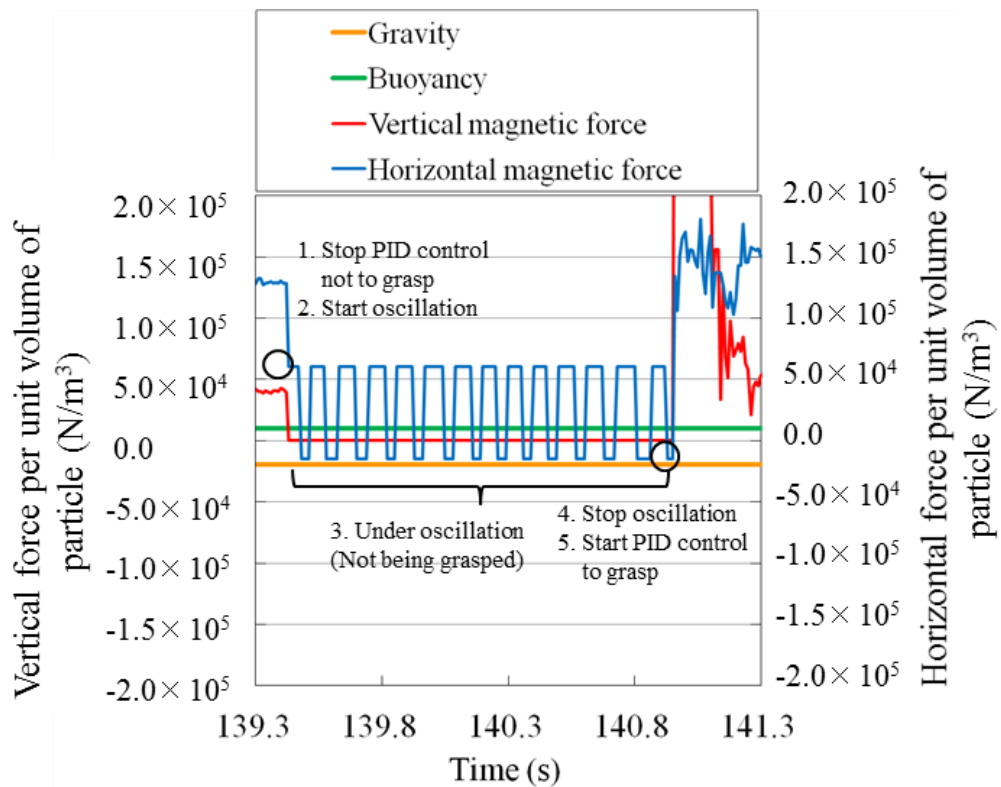


図 4-30 10 Hz で振動させた場合(図 4-26(c))における、接触磁気把持対象の磁性微粒子群の作用力の時間変化(試行 4 回目)

そこで、チェーンクラスタ長とクラスタ切断性との関係について調べた。クラスタ切断を試みた対象の磁性微粒子群は、チェーンクラスタの長さが  $10 - 80 \mu\text{m}$  であった。図 4-31 には、2 - 20 Hz で水平方向に振動させた場合のクラスタ切断の過程の一例を表す。クラスタを構成している各磁性微粒子には外力として、主に磁気力、磁化した磁性微粒子間の粒子間磁気力、重力、浮力、流体抵抗、と磁気トルクが作用している。チェーン状クラスタ粒子群がクラスタ切断されるのは磁気力の向きが変わるタイミングであった。図 4-32 には全ての磁気分離試験対象の磁性微粒子群について、横軸に交番磁界の周波数を、縦軸にチェーンクラスタ粒子群のクラスタ長をとって相関を調べた。三角印は磁気分離が見られなかったグループを、丸印は磁気分離が見られたグループを表す。その結果、クラスタ長が長いほど周波数が低くても切断現象が見られ、周波数が高くなるにつれクラスタ長の短い磁性微粒子群の磁気分離が可能である傾向が得られた。この結果からは、 $1 \mu\text{m}$  程度のクラスタ長を持つ磁性微粒子群を切断するには 50 Hz 程度必要であることが示唆された。

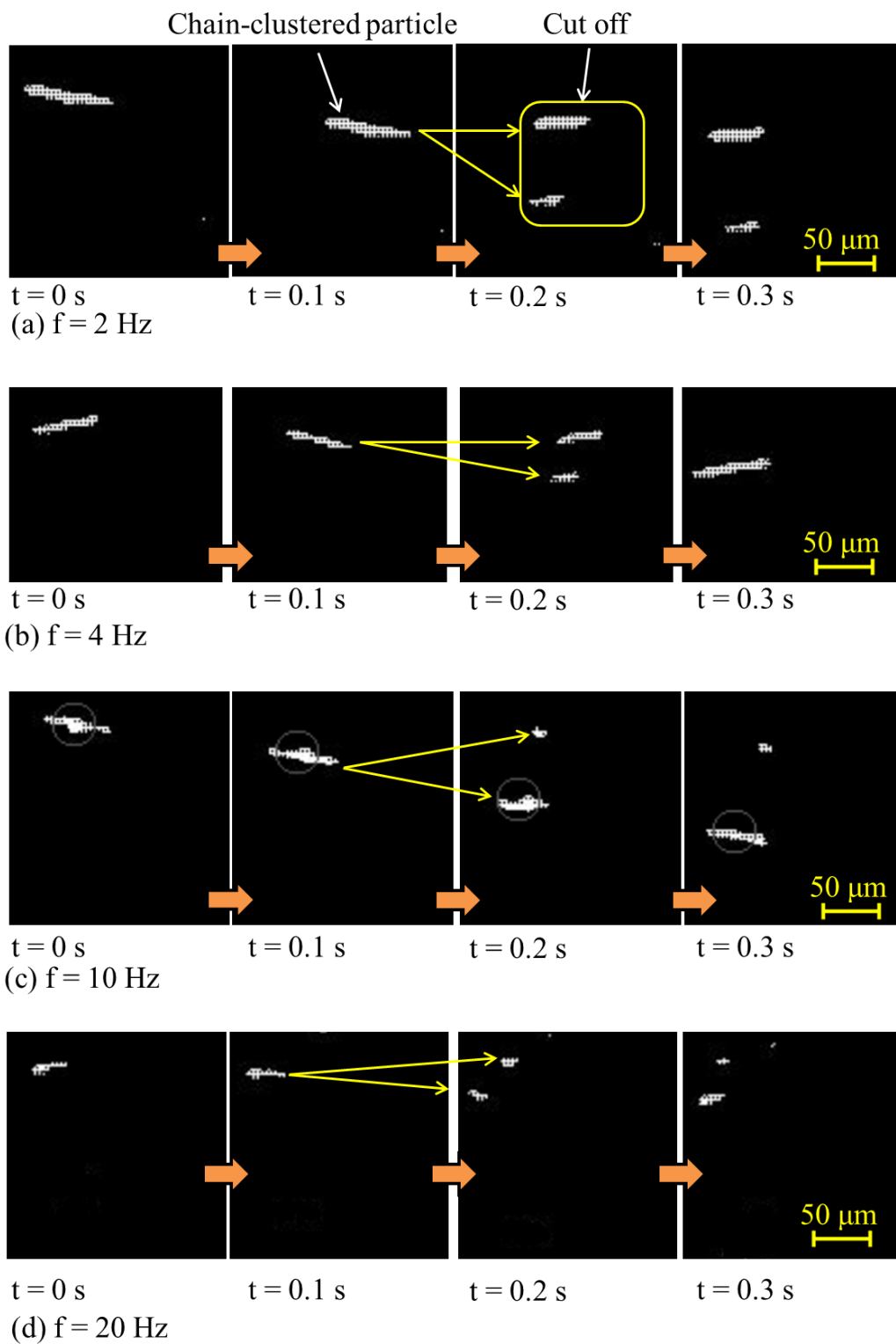


図 4-31 微小クラスタ化した磁性微粒子群の磁気分離。2 – 20 Hz で水平方向に振動させた場合のクラスタ切断の過程を表す。クラスタ切断後に再結合するケースも観察された。

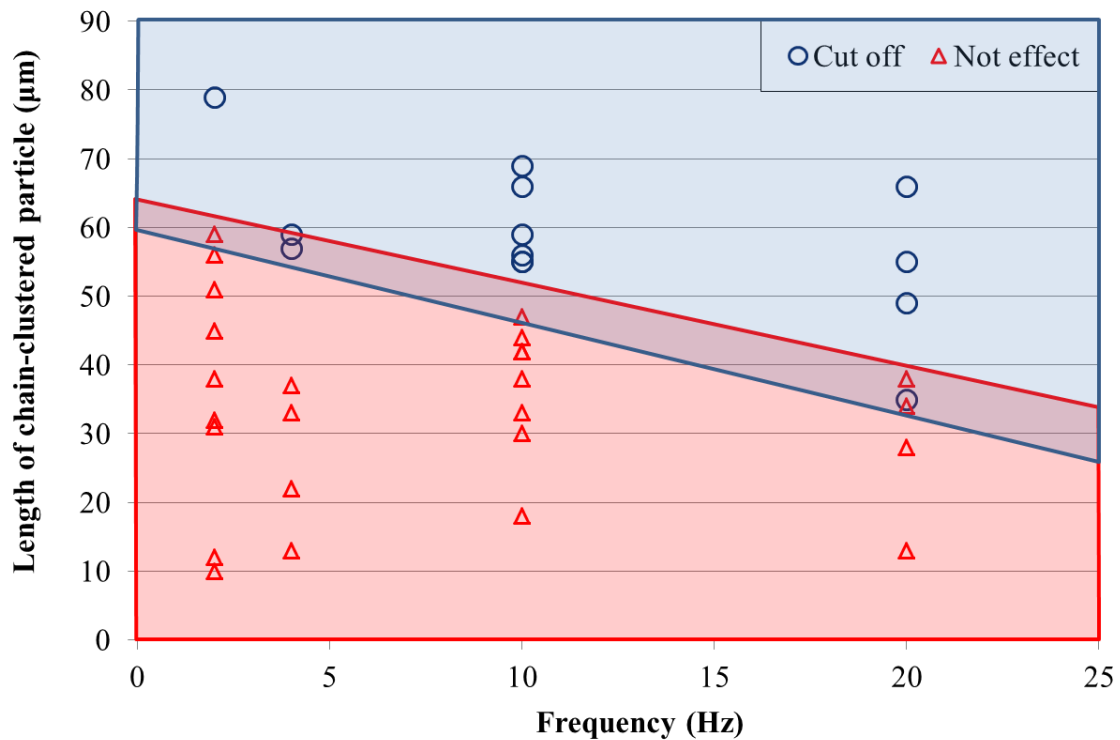


図 4-32 微小クラスタ化した磁性微粒子群に対する励磁周波数と磁性微粒子群のクラスタ長との関係(いずれのケースも重力の約 3 倍の力密度を作用させた)。丸印はその周波数でクラスタ切断可能であったグループ、三角印はクラスタ切断できなかったグループを表す。周波数の増加に伴いクラスタ切断可能なクラスタ長が短くなる傾向が表れている。この結果から、 $\mu\text{m}$  以下にクラスタ切断を行うには少なくとも 50 Hz 以上の交番磁界が必要であることが示唆される。

ここで、再現性の確認を行った図 4-25 を例としてクラスタ切断の要因を考察する。磁気把持中は水平軸に対して約 34 deg の角度をもって安定把持されていた。外部磁界による磁気力の作用方向は 22 deg、流体抵抗力は 197 deg であった。そのため、外部磁界による磁気力がないと、流体抵抗力と重力の作用で左下方向に流されることになる。この状態から磁気把持の制御を停止させ、あらたに 0 deg と 180 deg 方向に交番磁界を作用させる制御を開始した。磁性微粒子を画面中央付近で振動させるために、流体抵抗力の大きさを考慮に入れて 0 deg 方向には磁界を  $2.6 \times 10^4 \text{ A/m}$ 、180 deg 方向には半分の  $1.3 \times 10^4 \text{ A/m}$  としている。この結果、交番磁界作用中、チェーンクラスタ化した磁性微粒子群は水平軸に対して約 17 – 163 deg の範囲で長軸方向の傾きを変えながら回転及び並進した。チェーンクラスタ長が約



60  $\mu\text{m}$  のケースでは、10 Hz 以上の交番磁界でクラスタ切断が確認された。簡易的に理論計算するために、図 4-33 に示した概念図のように直径 10  $\mu\text{m}$  の粒子 6 個でチェーンクラスタが構成されていると仮定し、かつ、各粒子の中心に磁気モーメントが集中していると仮定する。チェーンクラスタが切断される両部位間に蓄積されている磁気双極子相互作用エネルギーと粒子間磁気力は式 4-7 と式 4-8 から計算される。ここで、交番磁界が作用している時、チェーンクラスタが 3 つずつに分かれる場合と、1 個と 5 個に分かれる場合のそれぞれの値は、最大で  $2.2 \times 10^{-13} \text{ J}$  と  $5.5 \times 10^{-8} \text{ N}$ 、及び  $1.9 \times 10^{-13} \text{ J}$  と  $5.1 \times 10^{-8} \text{ N}$  であり、中間の場合の方が約 1 割磁気双極子相互作用エネルギーと粒子間磁気力が大きい。これは実験結果において大きい粒子群と小さい粒子群に切断されやすい傾向と一致する。

実験結果から、0 deg と 180 deg 方向に作用させる交番磁気力によって切断することができているため、磁気双極子場による粒子間磁気力に逆らってクラスタ長軸方向に引っ張られて起こる切断とクラスタ長軸方向に垂直方向のせん断力が作用して起こる切断が主と想定する。前者は粒子の並進運動時の振動によって作用し、後者は並進運動による場合と磁気トルクの回転運動による場合に作用すると考えられる。はじめに式 4-12 から算出される並進運動時の振動エネルギーについて評価を行う。実験結果から、振動時の振幅は最大でもクラスター個分の長さであったので、上述した磁気双極子相互作用エネルギーの算出時に想定した 60  $\mu\text{m}$  とする。また、周波数 10 Hz 以上でクラスタ切断が観察されることから、この時のクラスタ全体の並進速度による振動エネルギーは  $4.5 \times 10^{-17} \text{ J}$  であった。なお、振動は簡単のため単振動と見なした。磁気双極子相互作用エネルギーと比較するとオーダーで 3 ケタ低い結果となったので粒子間磁気力に逆らって分離させるエネルギーとしては不十分と考える。また、クラスタサイズがマイクロオーダーで固有振動数は数十 MHz となるため、共振によるクラスタ切断ではない。

一方、磁気トルクの回転運動による切断の可能性を検討するため、式 4-10 からゼーマンエネルギーを算出する。実験結果から、外部磁界によって交番磁気力がクラスタに作用した際、クラスタ全体が一方向に回転することによって磁気モーメントの向きがおよそ外部磁界の方向に揃う。鎖状クラスタ全体の向きが切り替わるまでの回転角度は実験結果から約 18 – 167 deg であったので、クラスタ全体のゼーマンエネルギーは最大で  $1.1 \times 10^{-11}$  から  $2.6 \times 10^{-13} \text{ J}$  まで減少した。交番磁気力作用時の磁気双極子相互作用エネルギー範囲はクラスタ中央で切断される場合が  $5.5 \times 10^{-14} - 2.2 \times 10^{-13} \text{ J}$  であり、クラスタ端 (1 : 5) で切断さ

れる場合が  $4.6 \times 10^{-14} - 1.9 \times 10^{-13} \text{ J}$  であるため、いずれの場合でもゼーマンエネルギーのほうが 2 ケタ以上大きなエネルギーとなる。クラスタ切断は磁気トルクによる回転運動によって生じ、すなわち、上述したゼーマンエネルギーの減少は回転運動エネルギーやクラスタを構成している粒子間距離を引き離すエネルギーとして使われたと考えられる。

図 4-32 ではクラスタ長が短くなるほどにクラスタ切断が見られる周波数が高くなる傾向を示している。これについて次のように考える。クラスタを構成している粒子が 6 個の場合と、3 個の場合について 5 : 1 と 2 : 1 にそれぞれ切断される場合を例に考える。6 個の場合に対して 3 個の場合は、クラスタ全体の磁気モーメントが 1/2 になるため、ゼーマンエネルギー及び磁気トルクは 1/2 となる。それに対して、磁気双極子相互作用エネルギーは約 5 % 減少するにとどまる。これより、周波数が変わらない場合、クラスタ長が短い方が切断しにくい傾向となる。一方、回転運動時も並進運動と同様に振動エネルギーを考えると、図 4-32 の結果から、10 Hz の場合は切断が生じる最短長さが  $50 \mu\text{m}$ 、20 Hz の場合は  $38 \mu\text{m}$  となっているので、クラスタ長さが短くなることによるエネルギー減少よりも周波数の増加によるエネルギーの増加のほうが大きい。振動エネルギーは 1.8 倍となったことでクラスタ長が短い場合でも切断が可能となったことが示唆される。

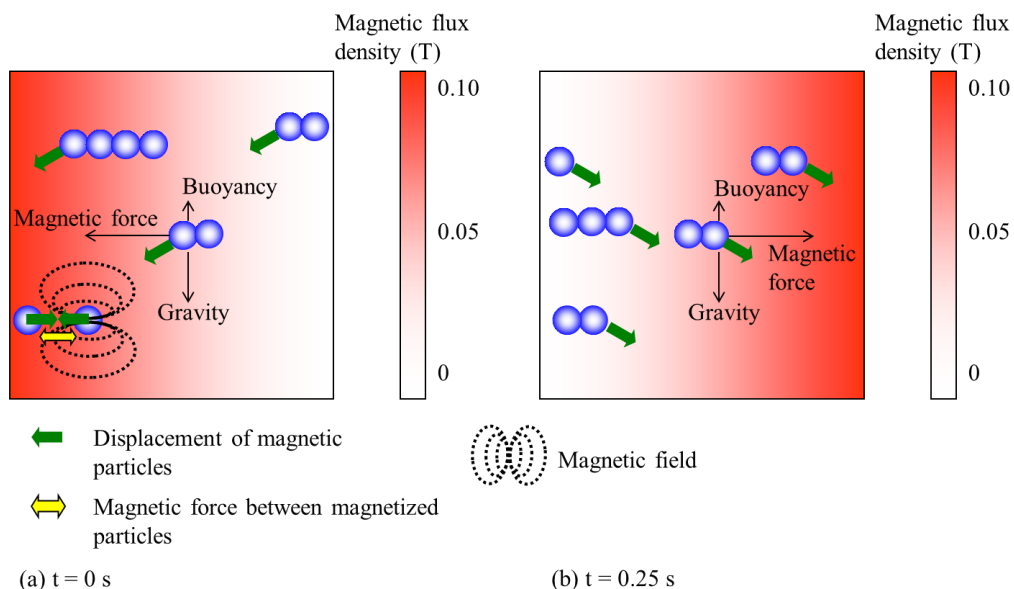


図 4-33 チェーンクラスタ化した磁性微粒子群のクラスタ切断時の概念図。(a)は左方向に磁界を作用させた瞬間、(b)は右方向に磁界を反転させた瞬間で、クラスタ粒子の分離や結合のイメージを表している。

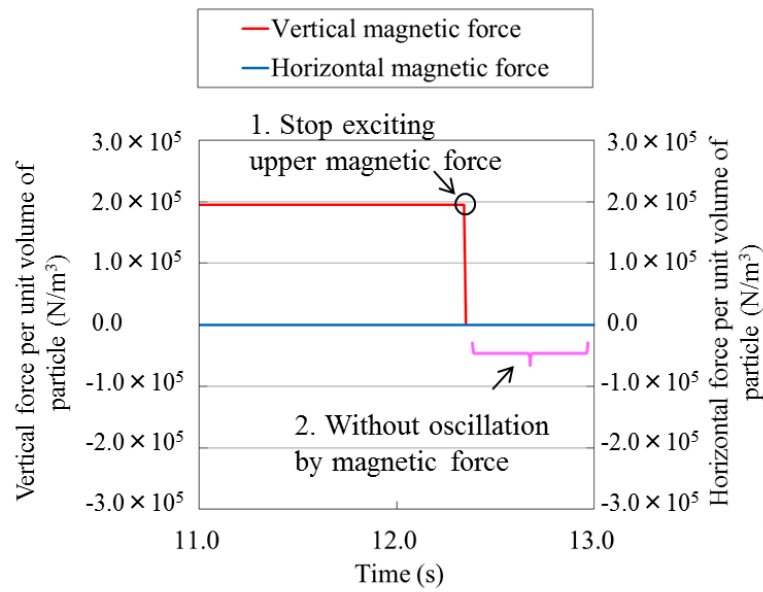
## 4.5 磁性微粒子の磁気捕集と磁気攪拌

前項では、一度クラスタ化した磁性微粒子群に交番磁界を作用させて、流体抵抗力和磁気力によって生じるせん断力を与えることで再度分離させることが可能であることを示した。そこで本節では、磁気力を利用したドラッグデリバリーを想定し、ガラスセル内に分散／浮遊している磁性微粒子を対象として、上部側電磁石によるガラスセル上壁への磁気捕集を行った。次に、外部磁界を除いたときの粒子挙動（粒子凝集性）について調べた。これにより、磁気捕集によって生じる磁性微粒子のクラスタ化について把握する。また、クラスタ化した磁性微粒子群に対する 4.4 節で示した磁気攪拌によるクラスタ切断の効果について把握する。

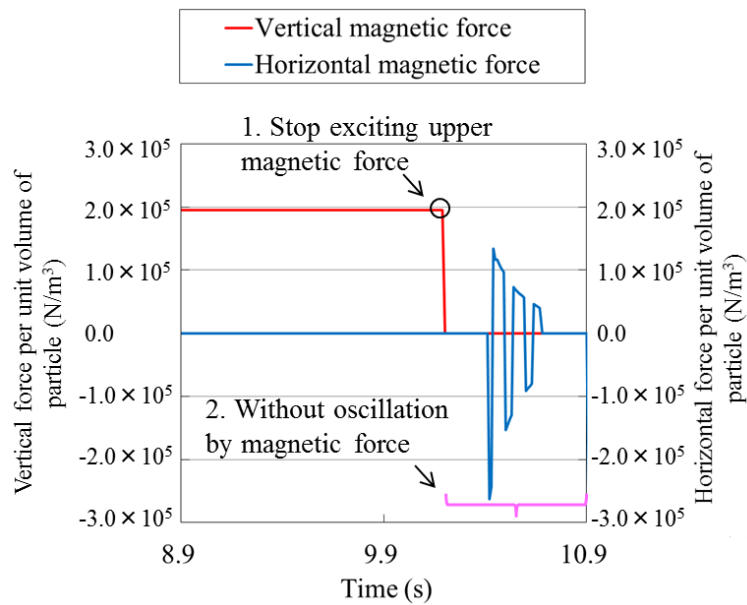
### 4.5.1 磁気捕集と磁気攪拌方法

実験装置は図 3-21 で示した流速制御可能な磁性微粒子駆動装置を用いたが、粒子の非接触磁気把持のための PID 制御を行う必要がないため、粒子画像を二値化処理せずにグレースケール表示にて粒子挙動を撮像した。また、観察視野内に磁性微粒子を輸送するために粒子循環ポンプを駆動させ、磁気捕集と磁気攪拌実験を行う直前にポンプを停止させた。磁気捕集と磁気攪拌方法は以下とする。

観察視野内に磁性微粒子が存在しているのを確認したら、上側電磁石のみに 12 A の電流を 10 s 間印加し、上部側の磁極へ磁性微粒子を吸引把持させる。その後、上側電磁石への電流印加を停止する。次に、パルス励磁ありのケースでは所定のパターンで励磁を一度だけ実施し吸引把持されていた磁性微粒子の沈降状況を観察する。一方、パルス励磁なしのケースでは最初に上部磁極に吸引把持した後に通電を停止したらそのまま磁性微粒子の沈降状況を観察する。図 4-34 に、上壁へ磁気捕集する時点から交番磁気力を作用させる時点までに作用させた磁気力の時間変化について、振動なしのケース（上）と振動ありのケース（下）について示した。なお、振動ありのケース（下）の波形は最も効果的にクラスタ切断させた場合の結果である。図 4-35 には、励磁したパルス波の減衰率や振幅や繰り返し数について、それぞれの場合におけるパルス波形の一例を示した。



(a) Without oscillation



(b) With oscillation

図 4-34 上壁へ磁気捕集する時点から交番磁気力を作用させる時点までに作用させた磁気力の時間変化(上: 振動なし、下: 振動あり)。上壁への磁気捕集は上図において赤線で示したように、 $2.0 \times 10^5 \text{ N/m}^3$  の上向きの力を磁性微粒子に作用させる。クラスタ化した磁性微粒子群に対する磁気分離の効果を確認するために、上向きの磁気力を停止させて無磁界下で粒子沉降を観察するケース(上)と、上向きの磁気力を停止させて交番磁界を作用させたのち無磁界下で観察するケースを実施。

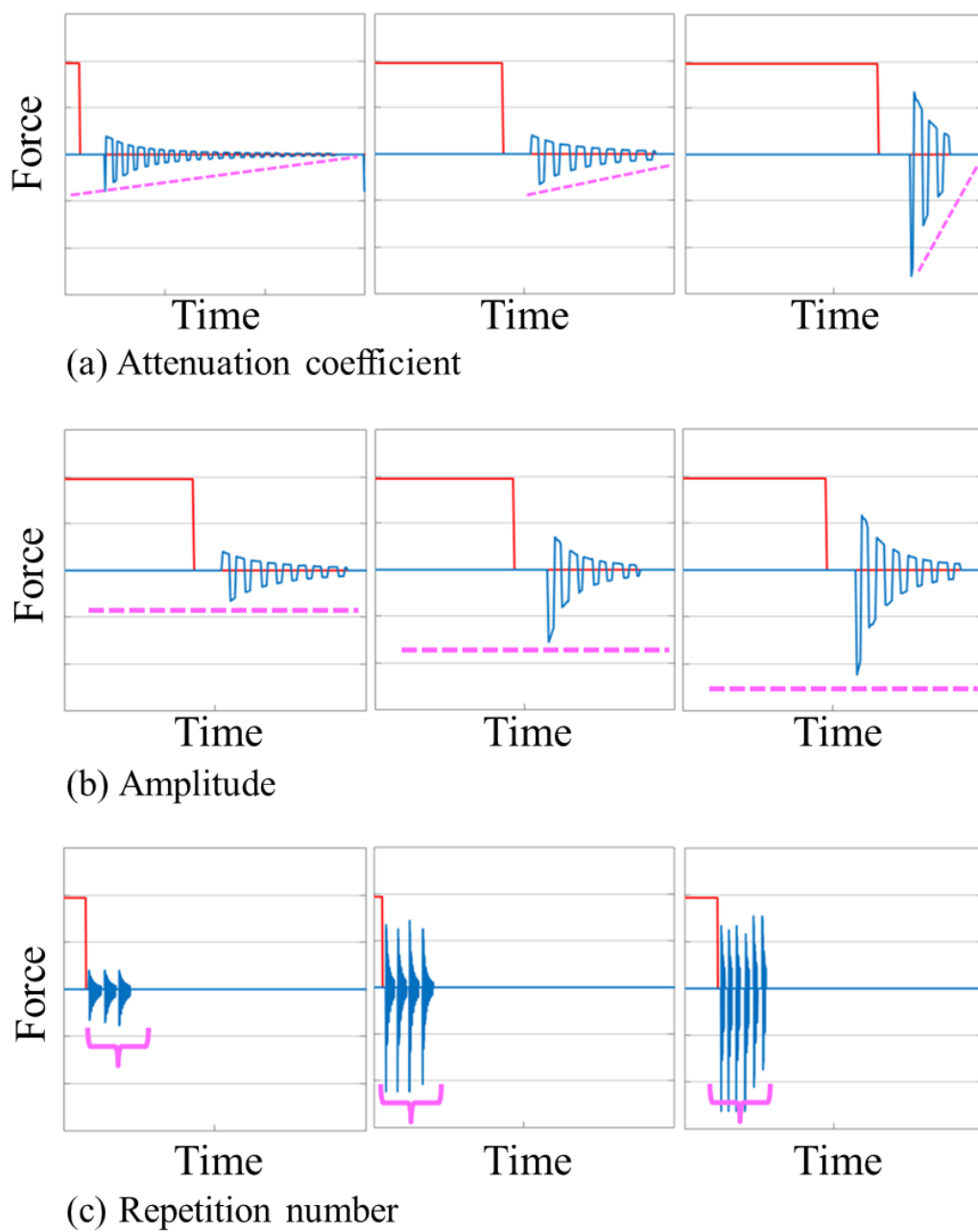


図 4-35 励磁したパルス波の減衰率や振幅や繰り返し数。上図において、赤線が上側電磁石によって磁性微粒子群に作用する力、青線が水平方向電磁石によって磁性微粒子群に交番状に作用させる力を表す。上壁への磁気捕集後に磁性微粒子群に作用させる交番磁気力波形の減衰率 (Attenuation)、振幅 (Amplitude)、波形の繰り返し数 (Repetition number) を、磁気分離に有効な波形を特定するための実験パラメータとする。

## 4.5.2 磁気捕集と磁気攪拌結果

図 4-36 には振動なしのケース、図 4-37 には振動ありのケースについて、ドラッグデリバリー模擬時の磁気捕集と解放、パルス磁界の印加と磁気攪拌状況について、連続画像を示した。図 4-36 の 1) は磁界を印加する前の磁性微粒子の連続画像である。いずれの粒子も自重で下方に移動している。図 4-36 の上から 2 列目 2) は上側電磁石にのみ電流を印加し、上向きの磁気力を磁性微粒子に作用させたときの連続画像である。磁性粒子は磁界が作用すると、その方向に磁氣的に分極する。S 極と N 極が正対した場合に互いの磁気双極子場の影響で粒子間磁気力が発生し、極が表れている先端にのみ次々と磁性微粒子が連結しチェーン状に成長していく。このような現象が、血管内に薬物を投入し磁気捕集した場合に生じると脳内の毛細血管等で閉塞する原因となるため問題となる。本実験でも、急速に粒子間磁気力で数百  $\mu\text{m}$  の長さにチェーンクラスタ化しつつ、上方へ磁気捕集されている様子が観察された。励磁 10 s 後には、上方へ磁気捕集されるクラスタ粒子がほぼ観察されなくなったが、上向きの磁界印加を停止すると図 4-36 の上から 3 列目 3) と 4 列目 4) に示されているように数ミリにクラスタ化した磁性微粒子群が次々と落下してくる様子が観察された。励磁停止約 50 s 後においてもクラスタ粒子の落下が確認された。

これに対して振動ありのケースでは、図 4-37 の上から 1 列目と 2 列目は図 4-36 と同じ傾向を示しているが、水平方向磁気力を作用させたために上から 4 列目では巨大クラスタ化した磁性微粒子群が上方への磁界印加停止 20 s 以降では見られなくなった。観察視野が限定されているため、クラスタ切断の様子は確認できないが、図 4-35 で示したように大きな振幅ですばやく減衰させることによって、切断された磁性微粒子の再結合が緩和できているものと考ええる。これより、適切なパルス幅と振幅で励磁することにより、数十マイクロンに磁氣的にせん断される可能性を一例として示すことができた。今後、様々な条件下にて磁気捕集、凝集、磁気攪拌に関する実験を行い、本手法の成立性のさらなる検証が望まれる。

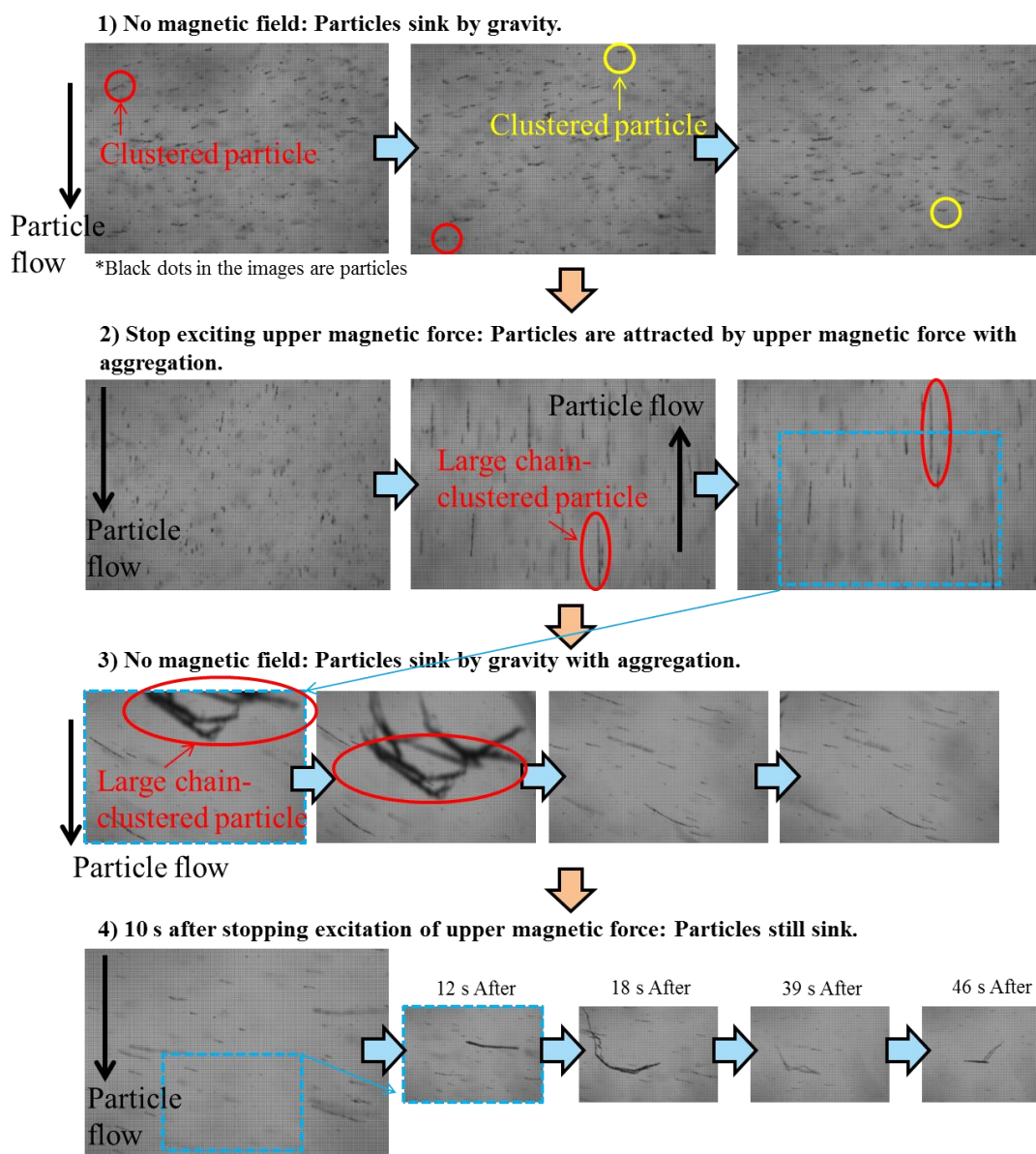


図 4-36 ドラッグデリバリー模擬時の磁気捕集と解放時の連続画像(振動なし)。1)磁界が作用していない初期状態で、磁性微粒子が分散して存在している。2)上側への磁気力を作用させたため、画面中丸で示したようにチェーン状にクラスタ化した磁性微粒子群が多く観察される(画面内の赤丸)。3)上側への磁気力を停止させたため、上側磁極に吸引され捕集されていたチェーン状にクラスタ化した磁性微粒子群が沈降してくる様子が観察される。4)数十秒たっても引き続き上側磁極からの長いチェーン状クラスタの沈降が観察される。



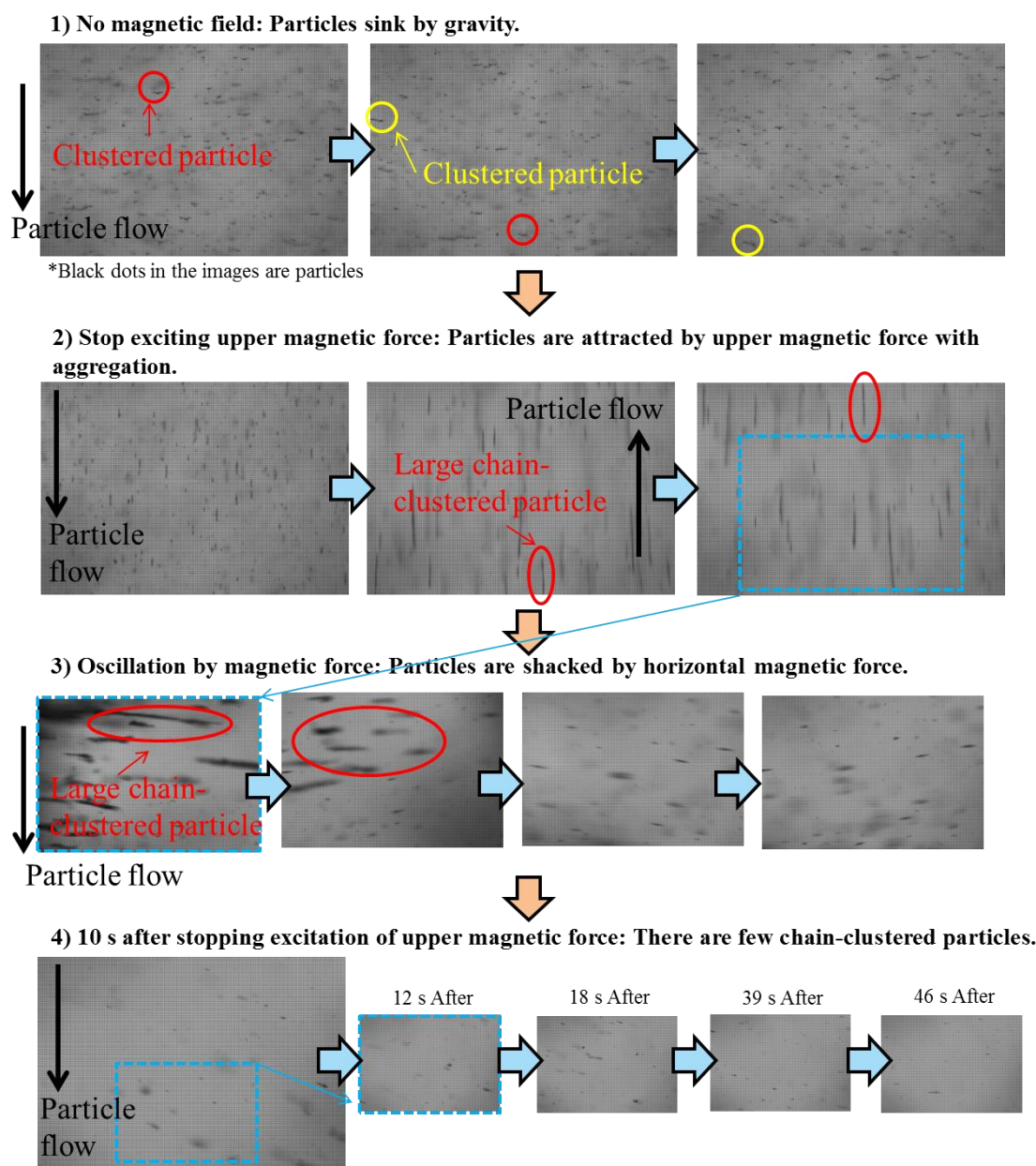


図 4-37 ドラッグデリバリー模擬時の磁気捕集、解放、水平方向振動、及び振動停止後の連続画像（振動あり）。1) 磁界が作用していない初期状態で、磁性微粒子が分散して存在している。2) 上側への磁気力を作用させたため、画面中丸で示したようにチェーン状にクラスタ化した磁性微粒子群が多く観察される（画面内の赤丸）。3) 上側への磁気力を停止させ、左右方向に交番磁気力を作用させたため、チェーン状にクラスタ化した磁性微粒子群は横向きに配向し振動している様子が観察される。4) 図 4-36 と同様に上側磁極から沈降してくる磁性微粒子群を観察するが、著しくチェーン状にクラスタ化した磁性微粒子群は観察されなかった。



## 4.6 本章のまとめ

本章では、はじめに第3章で実施した粒子挙動や粒子に対する作用力の実測結果から、非接触磁気操作に必要な力を把握した。そしてこれらの知見に基づいた、流体中のマイクロオーダーの磁性微粒子を対象とした非接触磁気操作の方法について検討した。すなわち、非接触磁気把持技術を応用し、磁性微粒子の座標を指標として磁気力を水平垂直方向に制御することで、磁性微粒子を任意の場所へ任意の軌跡で誘導する磁気ガイドの方法について検討した。さらに、磁界を利用する磁性微粒子駆動では避けられない粒子間磁気力による凝集に関して、一度クラスタ化した磁性微粒子群に交番磁界を作用させ、流体抵抗力和磁気力とのせん断力を与えることで再度分離させる磁気分離に取り組んだ。最後に本研究の適用先の一つであるドラッグデリバリーを模擬した磁気捕集、及びその後の磁気攪拌による粒子分散方法について検討した。これらの事項に取り組み、以下の結果が得られた。

- (1) 近接粒子が存在しない場合について：異なった粒子径や流速や粘性条件下で計測された流体抵抗力を粒子径と粘度で正規化した結果、流体速度相当の値と非接触磁気駆動に必要な磁気力との間には明確な比例関係が見られた。また、直線近似した傾きは粘度が大きくなるにつれて大きくなり、粘度が増すごとに非接触磁気操作に必要な磁気力が必要となることが示され定性的な傾向と一致した。
- (2) 近接粒子が存在する場合について：マイクロオーダーの強磁性微粒子を対象とする非接触磁気操作では、粒子間磁気力が小さい条件においては、非接触磁気操作に必要な磁気力は流体抵抗性に抗する力が支配的になり、粒子間磁気力が大きくなるにしたがい、粒子間磁気力に抗する力が相対的に増加し支配的になる傾向が示された。また、粒子間距離が 0.5 mm 以上離れている場合は重力（この粒子径では約 82 pN）に比べて無視できる程度の粒子間磁気力が作用する状態となり、磁性微粒子の非接触磁気操作時にはほとんど影響を及ぼさないことがわかった。
- (3) 液体を充填したガラスセル空間内に浮遊、流動している磁性微粒子（微小クラスタ）を、高速画像処理による粒子座標を指標としたフィードバック制御を行うことにより、選択的に任意の軌跡で非接触磁気駆動できた。
- (4) 粒子サイズが異なる磁性微粒子が周囲に存在する状態で任意軌跡での磁気駆動を行う場合、粒子体積が 3.6 %異なる磁性微粒子ではほぼ同様な軌跡をトレースした。一方、粒子形状はもとより粒子体積が 20.9 %以上異なる磁性微粒子では磁気力の影響を受けてはいるものの、磁気力や流体抵抗や重力の影響度が異なり位置制御に従わなかった。

これより、選択的な非接触磁気駆動、あるいは磁気特性や粒子体積を指標とした磁気分離が可能であることがわかった。

- (5) 磁気的な操作によって磁化されて凝集した磁性微粒子群に交番磁界を与えることで、一旦クラスタ化した磁性微粒子群を再現性よくクラスタ切断させる事ができた。ここで、観察視野内で振動を与えられる励磁条件として最大  $2.6 \times 10^4$  A/m の磁界強度の条件下でクラスタ長の異なる磁性微粒子群を対象として励磁周波数とクラスタ切断の可否との相関を調べた結果、クラスタ長が短くなるほどに高い周波数で切断される傾向が得られた。またこの結果から、1  $\mu\text{m}$  以下の磁性微粒子群をクラスタ切断するためには、50 Hz 以上の周波数で磁気的な振動を与える必要があることが示された。
- (6) 磁性微粒子制御の応用先の一つであるドラッグデリバリーでは、治療個所への粒子凝集は目的とする挙動であるが、治療後には不要になった粒子を分散させて血管に詰まらせることなく、体外に排出させる必要がある。微小クラスタ化した磁性微粒子群に対する定量的なパルス励磁試験を行った知見をもとに、ドラッグデリバリーを想定した磁気捕集によりガラスセル内で多数存在する巨大クラスタ粒子を、適切なパルス励磁により切断、分散可能である可能性を示した。

## 参考文献

- 1) A. Nacev, C. Beni, O. Bruno, B. Shapiro: “The behaviors of ferromagnetic nano-particles in and around blood vessels under applied magnetic fields.”, J. Magn. Magn. Mater., Vol. 323, No. 6, pp. 651 – 668 (2011)
- 2) C. Wilhelm, F. Gazeau, and J. C. Bacri: “Rotational magnetic endosome microrheology: Viscoelastic architecture inside living cells.”, Phys. Rev. E, Vol. 67, No. 6, 061908 (2003)
- 3) E. P. Furlani and K. C. Ng: “Nanoscale magnetic biotransport with application to magnetofection.”, Phys. Rev. E, Vol. 77, No. 6, 061914 (2008)
- 4) U. K. Cheang, D. Roy, J. H. Lee, and M. J. Kim: “Fabrication and magnetic control of bacteria-inspired robotic microswimmers.”, Appl. Phys. Lett., Vol. 97, No. 21, 213704 (2010)
- 5) S. Ostergaard, G. Blankenstein, H. Dirac, and O. Leistiko: “A novel approach to the automation of clinical chemistry by controlled manipulation of magnetic particles.”, J. Magn. Magn. Mater., Vol. 194, No. 1 – 3, pp. 156 – 162 (1999)
- 6) J. Cai, X. Li, D. Zhang, and Y. Li: “Behavior of micromagnetic particles in an opposed-poles orientation magnetic field.”, J. Magn. Magn. Mater., Vol. 246, No. 1 – 2, pp. 36 – 39 (2002)
- 7) K. Keshoju, H. Xing, and L. Sun: “Magnetic field driven nanowire rotation in suspension.”,

- Appl. Phys. Lett., Vol. 91, No. 12, 123114 (2007)
- 8) Q. Ramadan, D. P. Poenar, and C. Yu: "Customized trapping of magnetic particles.", *Microfluid. Nanofluid.*, Vol. 6, No. 1, pp. 53 – 62 (2009)
  - 9) F. Mishima, S. Fujimoto, S. Takeda, Y. Izumi, and S. Nishijima: "Development of control system for magnetically targeted drug delivery.", *J. Magn. Magn. Mater.*, Vol. 310, No. 2, Part 3, pp. 2883 – 2885 (2007)
  - 10) T. Ohara: "Particle capture theory and experiment on an amorphous magnetic ribbon filter.", *IEEE Trans. Magn.*, Vol. 20, No. 2, pp. 436 – 443 (1984)
  - 11) S. V. Gorobets, and I. A. Melnichuk: "Ordering of two-dimensional system of ferromagnetic particles in magnetic field.", *J. Magn. Magn. Mater.*, Vol. 182, No. 1 – 2, pp. 61 – 64 (1998)
  - 12) Y. Ido, T. Yamaguchi, and Y. Kiuchi: "Distribution of micrometer-size particles in magnetic fluids in the presence of steady uniform magnetic field.", *J. Magn. Magn. Mater.*, Vol. 323, No. 10, pp. 1283 – 1287 (2010)
  - 13) R. Pastor-Satorras, and J. M. Rubi: "Dipolar interactions induced order in assemblies of magnetic particles.", *J. Magn. Magn. Mater.*, Vol. 221, No. 1 – 2, pp. 124 – 131 (2000)
  - 14) S. Tokura, M. Hara, N. Kawaguchi, J. Izawa, and N. Amemiya: "Visualization of magnetic microparticles in liquid and control of their motion using dynamic magnetic field.", *J. Appl. Phys.*, Vol. 107, No. 9, 09B521 (2010)
  - 15) S. Tokura, M. Hara, N. Kawaguchi, and N. Amemiya: "Contactless grasp of a magnetic particle in a fluid and its application to quantifications of forces affecting its behavior.", *J. Magn. Magn. Mater.*, Vol. 353, pp. 82 – 89 (2014)
  - 16) H. Kikura, J. Matsushita, N. Kakuta, M. Aritomi, and Y. Kobayashi: "Cluster formation of ferromagnetic nano-particles in micro-capillary flow.", *J. Mat. Proc. Tech.*, Vol. 181, No. 1 – 3, pp. 93 – 98 (2007)
  - 17) Y. Tanaka, and S. Maenosono: "Amine-terminated water-dispersible FePt nanoparticles.", *J. Magn. Magn. Mater.*, Vol. 320, No. 19, pp. L121 – L124 (2008)
  - 18) E. P. Furlani: "Analysis of particle transport in a magnetophoretic microsystem.", *J. Appl. Phys.*, Vol. 99, No. 2, 024912 (2006)
  - 19) H. Kikura, J. Matsushita, O. Hirashima, M. Aritomi, and I. Nakatani: "Flow visualization and particle size determination of primary clusters in a water-based magnetic fluid.", *J. Magn. Magn. Mater.*, Vol. 289, pp. 392 – 395 (2005)

# 第 5 章 高磁界下における磁性微粒子の 挙動と非接触磁気駆動の可能性

## 5.1 本章の背景と狙い

第 4 章までに実施した体系的な磁性微粒子挙動や作用力の評価から、磁気飽和していないマイクロオーダー磁性粒子について、支配的に作用する力の大きさや影響範囲などの知見を得ることができ、それらを基に流体中に浮遊、流動している複数の磁性微粒子の中から特定の磁性微粒子を選択的に把持し任意の軌道で誘導する磁気ガイドについて実証することができた。また、磁気的な操作によって生じる磁性微粒子のクラスタ化に対しても適切な励磁条件を選択することで磁気力をもってクラスタ切断が可能であることを示すことができた。一方、最終的な目標としているナノオーダー磁性粒子を対象とした挙動や作用力の把握、あるいは非接触磁気操作については対象外としていた。

本章でははじめに、常伝導電磁石で発生可能な磁気力の制約から、第 4 章までは検討対象外としていたマイクロスケールにおける飽和領域にある強磁性微粒子、同じくマイクロスケールにおける未飽和から飽和領域に至る磁化の弱い磁性微粒子、及びナノスケールにおける未飽和から飽和領域に至る強磁性微粒子について超伝導電磁石発生磁界下における粒子挙動の可視化試験を行う。そのためにはじめに、第 2 章で検討した可視化手法に基づき、狭隘かつ遠方な空間である超伝導電磁石ボア内に対して適用可能な可視化システムを構築する。これにより、外部磁界に応答して磁化特性が未飽和から飽和状態に変化する磁性微粒子を対象として、磁気特性変化が非接触磁気駆動に及ぼす影響、及び粒子自身の磁化による粒子凝集について実験的に把握することを目標とする。

また、市販の磁界解析コードと熱流体解析コードを連携させた解析方法を用い、超伝導電磁石発生磁界下において磁化が未飽和から飽和状態に遷移する領域で粒子挙動解析を実施し、実験結果と比較することで粒子挙動を示す要因を把握する。実験と解析を組み合わせ、ナノからマイクロオーダー、及び未飽和から飽和状態に遷移する領域において磁性粒子の非接触磁気駆動の可能性や課題を示す。

## 5.2 高磁界下における磁性微粒子の挙動

### 5.2.1 高磁界下における磁性微粒子挙動の評価装置

本項では初めに、次に示す点に関する課題を解消するために、第2章で示した可視化システム構成の改善を検討した。すなわち、超伝導電磁石の発生する磁界領域が超伝導コイルに囲まれた狭隘な空間（ボア端部:  $\phi 100\text{ mm} \times \text{約 } 200\text{ mm}$ ）となっている点、カメラが設置可能な観察位置から遠方である点、高磁界にさらされていることによる電子機器の電磁干渉性の点、において対策を検討した。

超伝導電磁石発生磁界下において第2章で示した可視化システムを使用するにあたり、マイクロ스코プ以外の光学機器は磁界の影響を受けるために必要に応じて5 Gaussラインまで離して設置するか、磁気シールドによって保護する必要がある。図5-1(a)に示した超伝導電磁石軸上の磁束密度分布によると、中心磁束密度が10 Tの場合、超伝導電磁石ボア出口においては1.5 T以上の漏えい磁束密度があり、また、そこから600 mm離れた軸上においても約90 mTの磁束密度となっている。側視タイプのボアレング（長さ300 mm）によってマイクロ스코プを可能な限り観察用ガラスセルから離れたとしても、それと連結されている電子機器である高速カメラが正常な動作を保証できない磁束密度となっている。そこで、高速カメラについては磁気シールドを周囲に設置し、その先の画像処理装置やPCは5 Gaussラインまで退避させる方針とした。

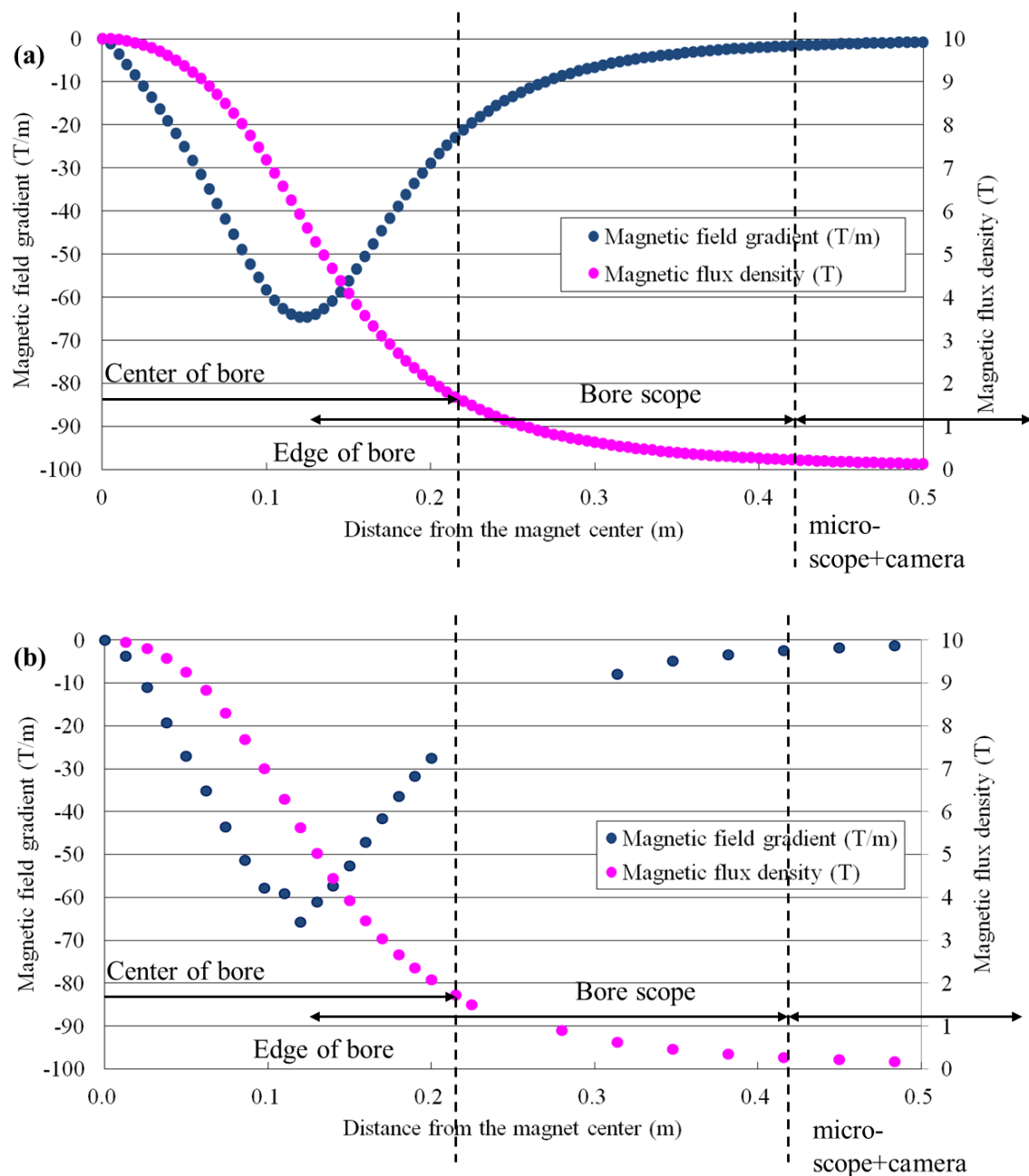


図 5-1 超伝導電磁石軸上の磁束密度と磁気勾配分布 (a: 計測データ、b: 磁界解析)。グラフ中の矢印: 0 – 0.22 m は超伝導電磁石ボア中心～ボア端部、0.13 – 0.42 m はボアスコープの下端～上端、0.42 m 以上はマイクロスコープ+カメラの位置を表す。

はじめに、使用する超伝導電磁石をモデル化 (図 5-2) し、磁気シールド効果とそれによって発生する超伝導コイルとの磁気力の評価を磁界解析によって行った。ここで、解析モデルは超伝導コイルとボア領域 (空気) と磁気シールド (材質: 一般構造用圧延鋼材 SS400、

磁気特性: 図 5-3) から構成されており、超伝導コイル素線形状や巻き形状については細部をモデル化せず、電流と巻数の積である起磁力（起磁力:  $0 - 6.4 \times 10^5$  AT, 周期: 600 s, 波形: ノコギリ波）として解析条件を設定した。なお、起磁力は非定常計算により、600 s で超伝導電磁石のボア中心の磁束密度が所定の磁束密度となるように設定した。図 5-1 (b) に、超伝導電磁石をモデル化し磁界解析を行った結果を、超伝導電磁石軸上の磁束密度及び磁気勾配分布の計測値である図 5-1 (a) と合わせて示した。各グラフの原点は超伝導電磁石のボア中心である。二つの結果の比較から、解析にて良好に超伝導電磁石の発生磁界分布を表現できていることが確認できる。よって、このモデルを用いて、磁気シールド仕様を検討した。

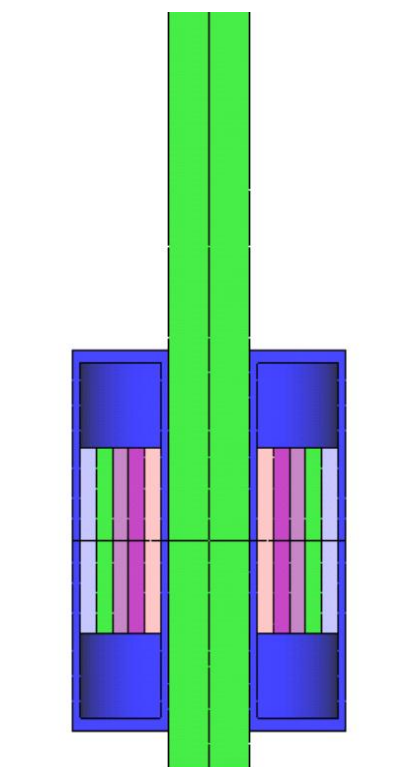


図 5-2 超伝導電磁石の磁界解析モデル図。解析領域内には、超伝導電磁石ボア及び延長上の空気領域(緑)、クライオスタット(青、物性は非磁性・非導電性)、超伝導コイル(ボア周囲に 5 層でモデル化: 電流を半径方向に極力一様に流すために電流設定領域を分割する目的)

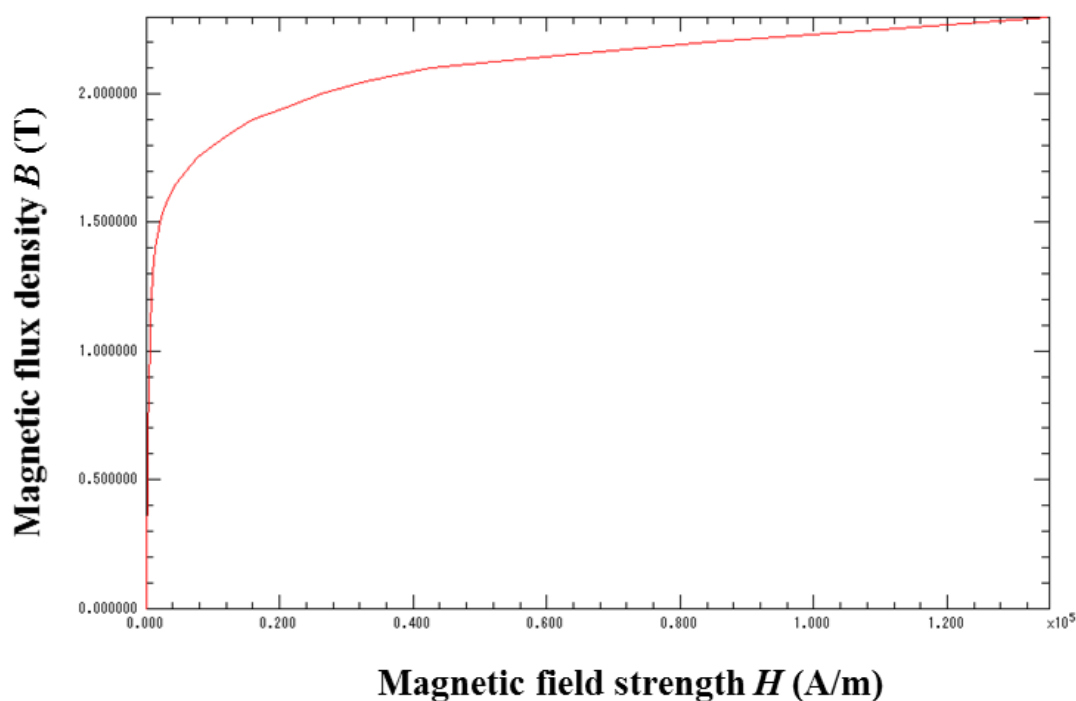


図 5-3 SS400 の  $B$ - $H$  カーブ。SS400(一般構造用圧延鋼材)の非線形磁気特性を考慮。

図 5-4 には、カメラ設置部（ボア中心から 600 – 800 mm 地点）周囲に円筒状の磁気シールド板を設置した際の効果（図 5-4 (a)：板厚 10 mm の磁気シールド板を設置した場合、図 5-4 (b)：磁気シールドなしの場合）について磁界解析結果を示した。この結果、磁気シールドを設置すると、シールド内の最大磁束密度は 85 mT から 8.2 mT まで減少したが、超伝導コイルと磁気シールド板の磁気的な吸引力は 30.1 kgf であった。超伝導コイル中心に対して上下点对称な位置にダミーの磁気シールド板を設置して超伝導コイルに作用する上下方向の磁気力を相殺する方針であるが、磁気シールド板の反作用力で超伝導コイルサポート部に過剰な力が作用することを避けるため、磁束密度 5 mT 以下で磁気吸引力が 10 kgf 以下となる磁気シールド形状や超伝導電磁石励磁条件を磁気シールド板厚さと起磁力をパラメータとして磁界解析を行い決定した。



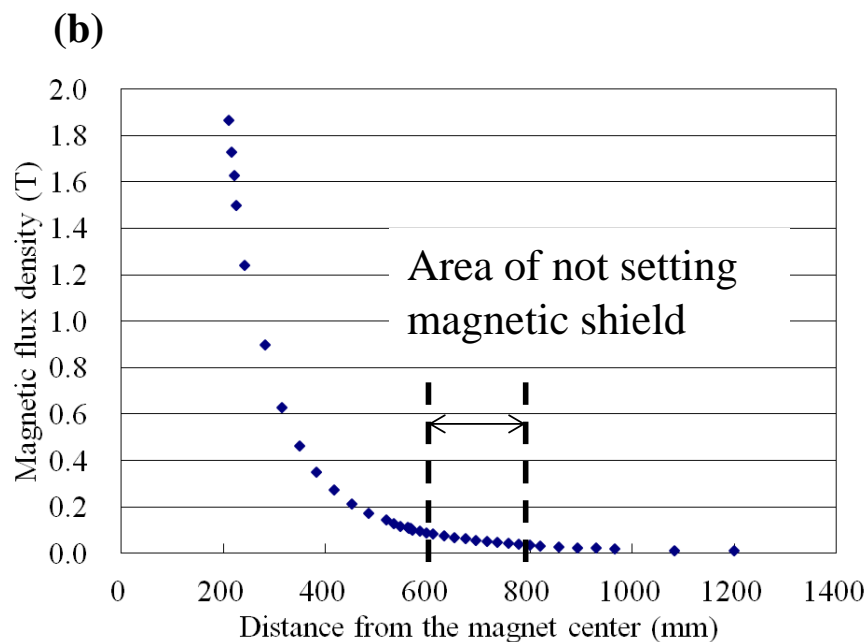
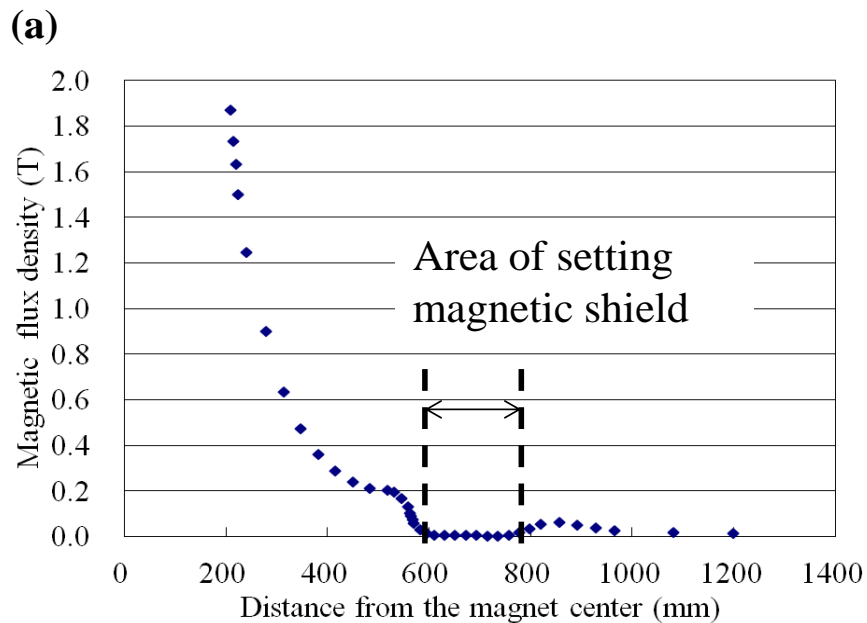


図 5-4 カメラ設置部周囲に磁気シールド板を設置した際の効果(a: SS 材, 厚さ 10 mm を設置した場合、b: 磁気シールドなしの場合)。(a) 8.2 mT, SS 材, シールド厚 10 mm、磁気吸引力: 30.1 kgf。(b) 85 mT、磁気吸引力: なし

図 5-5 と図 5-6 にその典型的な結果を一例として示した。図 5-5 はボア中心磁束密度を 5 T、磁気シールド板の厚みを 10 mm とした場合の解析結果である。磁性微粒子 (図 2-4, LD-M) に作用する磁気力を式 3-3 から簡易的に見積もった結果、粒子径 300 nm の磁性微粒子の場合であっても重力に逆らって非接触磁気駆動させることが可能であり、また十分に磁気飽

和に達することが確認できた。図 5-5 の左側グラフより、磁気シールド領域の最大磁束密度は 3.6 mT、超伝導コイルと磁気シールド板との吸引力は 7.9 kgf であり条件を満たす結果となった。図 5-6 はボア中心磁束密度を 5 T、磁気シールド板の厚みを 5 mm とした場合の解析結果である。磁気シールド領域内の最大磁束密度は 4.9 mT、超伝導コイルと磁気シールド板との吸引力は 6.9 kgf となっており、このケースにおいても条件を満たす結果となっている。以下では、図 5-6 の磁気シールド条件を採用する。

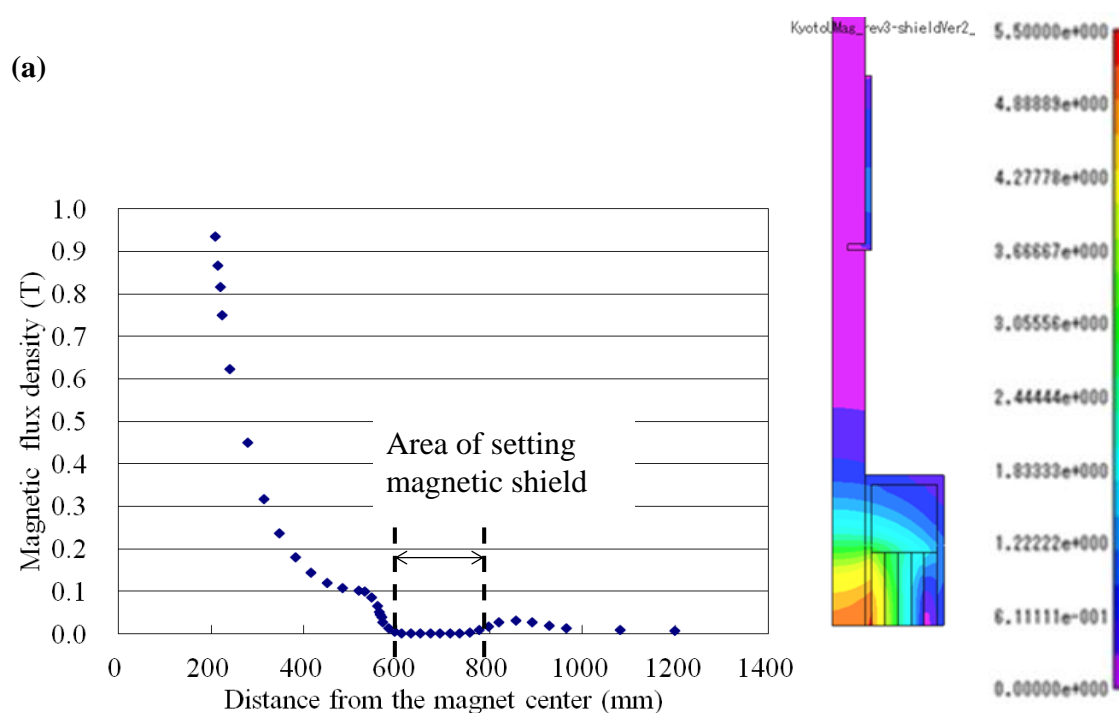


図 5-5(a) 磁気シールド効果と磁気吸引力、及び磁束密度分布。最大励磁: 5 T の場合。  
6 mT 以下, SS 材, シールド厚 10 mm、磁気吸引力: 7.9 kgf

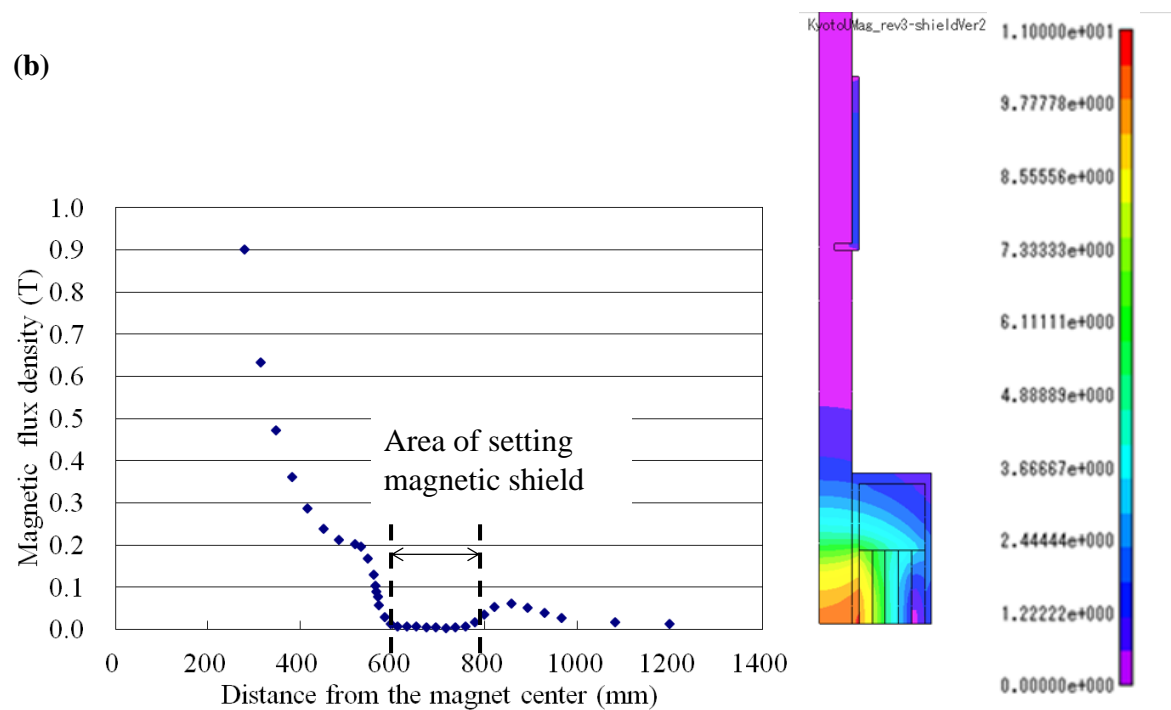
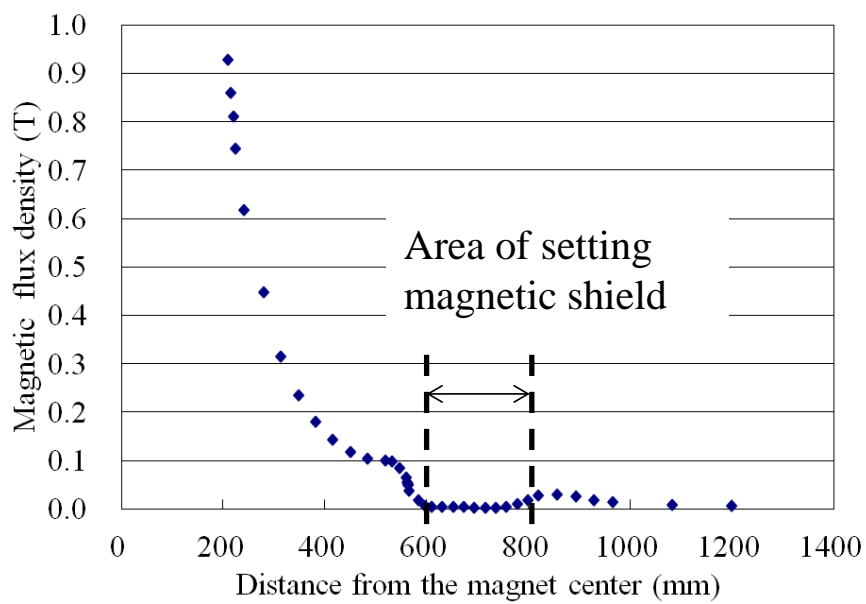


図 5-5(b) 磁気シールド効果と磁気吸引力、及び磁束密度分布。最大励磁:10 T の場合。8.2 mT 以下, SS 材, シールド厚 10 mm、磁気吸引力:30.1 kgf

(a)



(b)

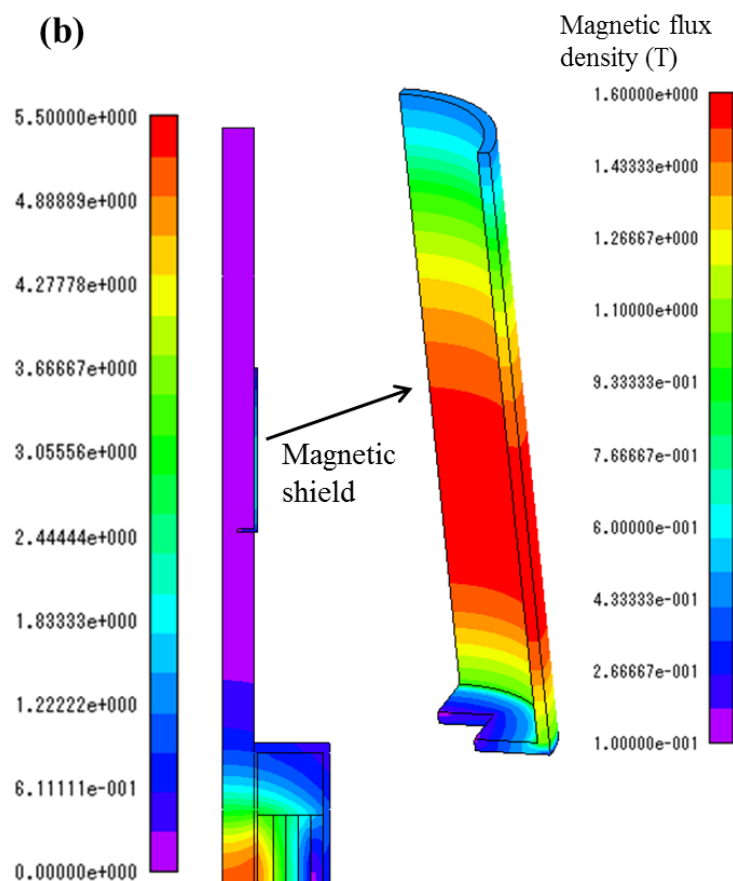


図 5-6 超伝導電磁石中心軸上の磁束密度分布(a)、及び超伝導電磁石と磁気シールド周辺の磁束密度コンター図(b)。最大励磁:5 T の場合。4.9 mT 以下, SS 材, 厚さ 5 mm、磁気吸引力:6.7 kgf。

次に、超伝導ボア内可視化システム全体の構成検討を行った。図 5-7 に概略図を示す。超伝導電磁石上面に非磁性（ステンレス鋼 SUS304）のフランジ状の筒を設置し、その内部に計測用ガラスセルやマイクロスコープ、ボアレレンズ、レーザ反射用プリズム、磁気プローブを格納し、その上の磁気シールドボックス内には高速カメラを格納した。取得する粒子画像データは画像処理装置を介して PC へ、観察用微粒子はポンプによってチューブ内を超伝導電磁石下方から上方へ所定の速度で流動させた。図 5-8 には超伝導電磁石フランジ上面部に設置する可視化装置の詳細構成を示す。図 5-1 より、磁気勾配の高い地点がボア上端部から下方へ約 90 mm 入ったところであるため、高い磁気力を得られるよう、ガラスセルはその前後に位置するように配置した（図 5-8）。また、側視タイプのボアレレンズを用い、ガラスセルの正面に挿入するとともに、側面側からレーザ反射用プリズムを介してレーザをガラスセルに照射した（図 5-7、及び図 5-8 の中央図）。

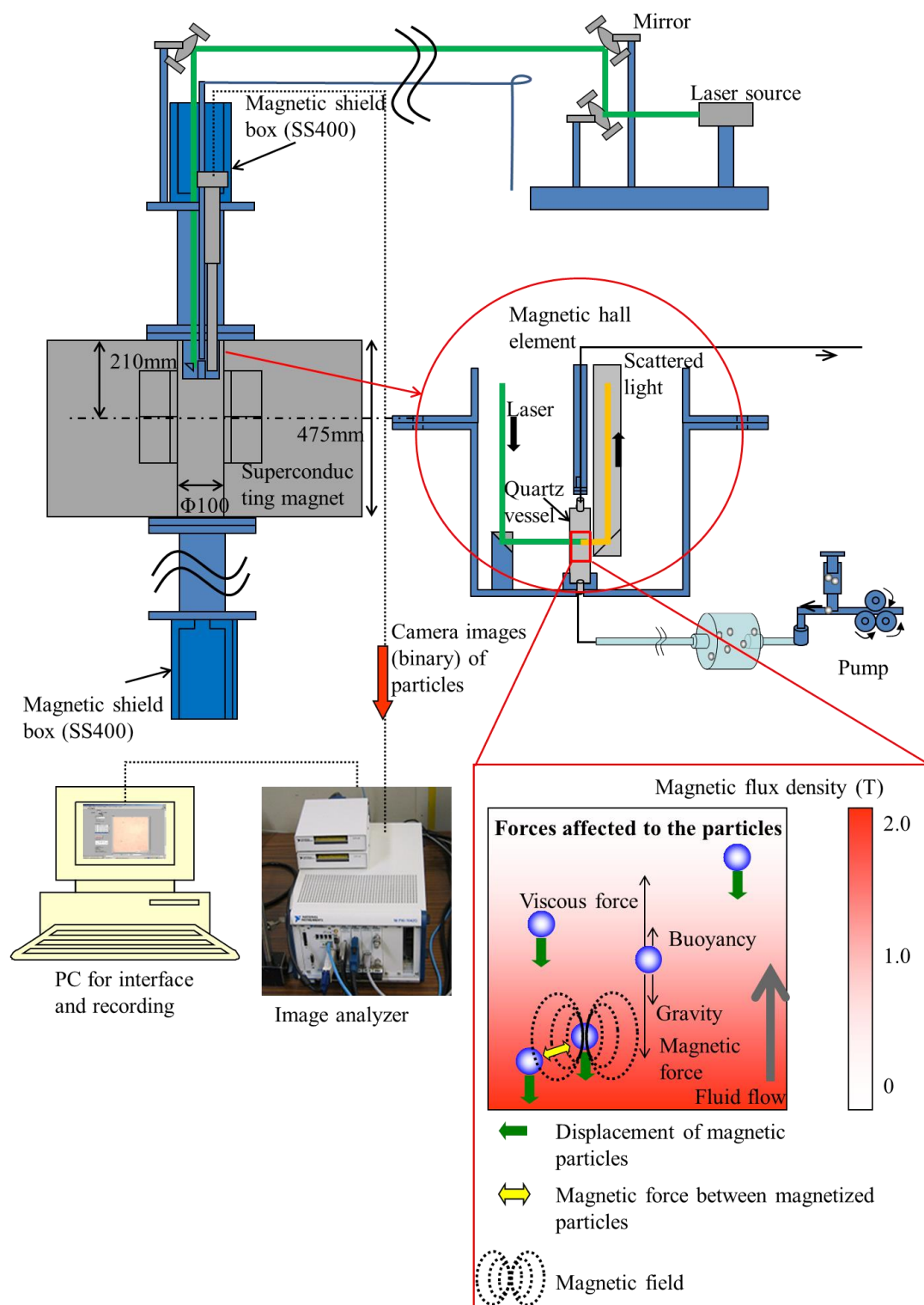


図 5-7 超伝導電磁石ボア内可視化システム概略図。光源はレーザ、ミラーにて超伝導電磁石ボア内部に誘導。高速カメラは磁気シールド内に設置し、側視タイプのボアレレンズとマイクロスコープとを組み合わせることで遠方、狭隘領域の可視化を可能とする。

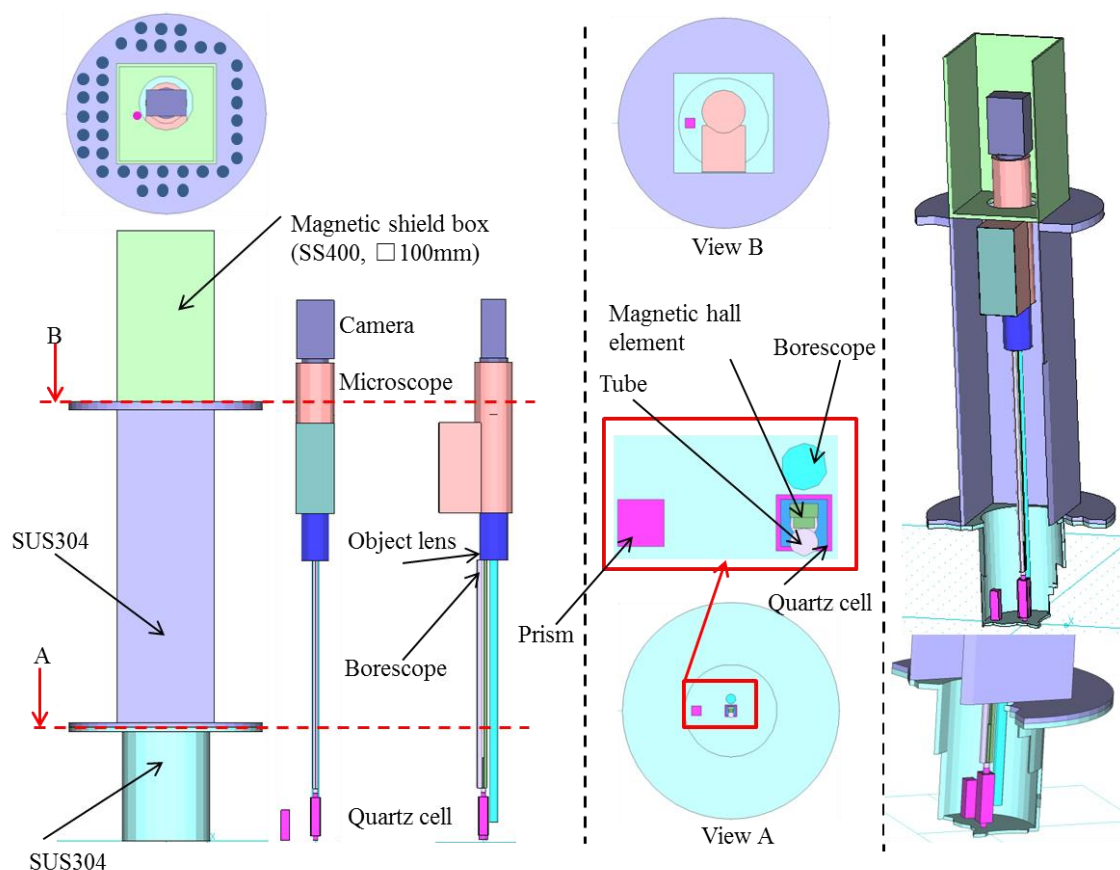


図 5-8 超伝導電磁石ボア内可視化装置。シリンジ内の流体セルに対して、側面からプリズムを介してレーザを照射し、正面から側視タイプのボアレレンズによって微粒子の散乱光をとらえる。

## 5.2.2 高磁界下における磁性微粒子挙動の評価方法

### 5.2.2.1 超伝導電磁石ボア内における磁性微粒子挙動可視化装置の動作試験方法

超伝導電磁石ボア内の可視化用に製作した可視化装置の性能確認試験では、励磁なしの条件下における粒子流動性の確認を行う。前項にて検討し製作した超伝導電磁石ボア内可視化システムの組み付け後の写真を図 5-9 に示す。超伝導電磁石全体をレーザの散乱を防ぐために黒色カーテンで覆った（図 5-9 の左図）。

はじめにボアレレンズ、マイクروسコープ、レーザの光軸合わせを行った後、粒子循環用ポンプを駆動させる。粒子観察には、図 5-7 で示した流速制御可能な磁性微粒子可視化システムを用いる。上流側のタンクに純水と磁性微粒子を満たしておく。粒子循環用ポンプを駆動しシリコンチューブを介して石英ガラスセルに磁性微粒子を供給する。次に、モニタ

用の PC から磁性微粒子可視化プログラムを起動させ高速カメラを介して粒子画像を 100 fps で連続的に取得する。

可視化試験では、粒子循環用ポンプの指令値と磁性微粒子の速度との相関を把握するために、粒子循環用ポンプの出力を 0–1000 へ変化させ、その時の粒子画像を動画として PC に保存した。保存した動画から、画像処理によって画面内の複数の微粒子の位置変化を取得した。

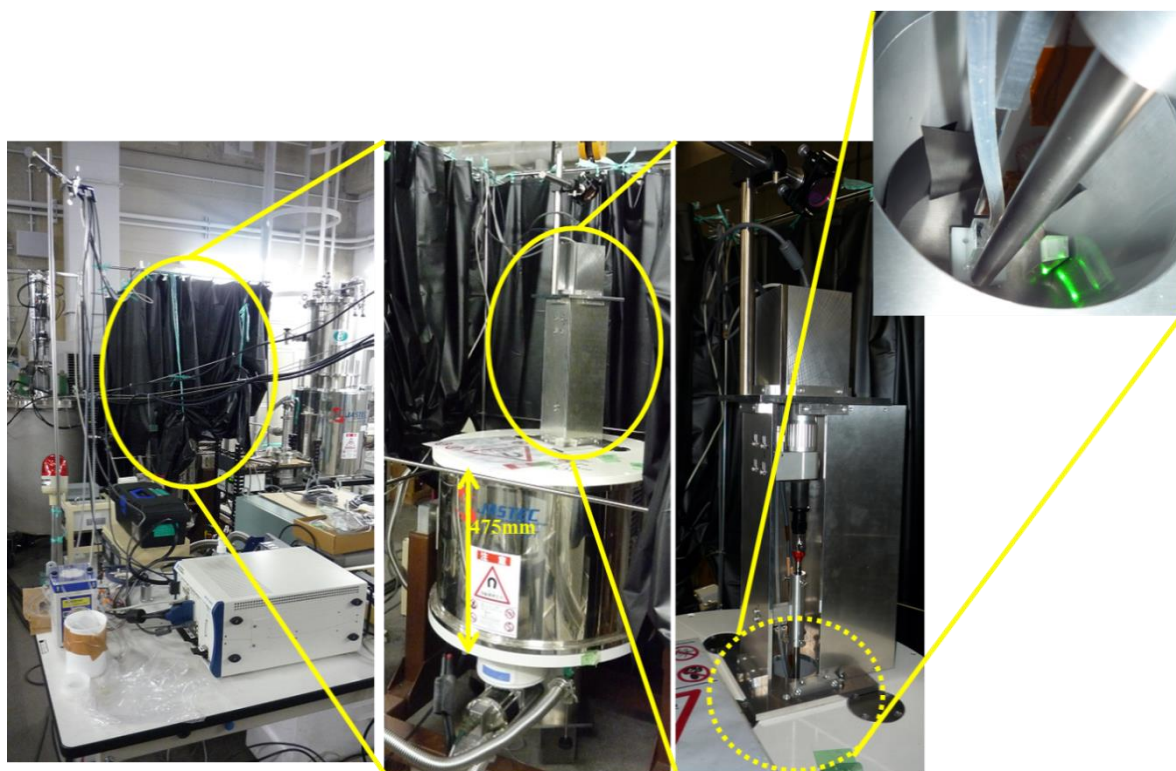


図 5-9 10 T 超伝導電磁石、及び可視化システム。レーザが周囲に漏れないように全体を暗幕でおおう(写真左)。画像処理装置等は5ガウスラインより外に設置し、内には磁気シールドを施した高速カメラ、及び非磁性のその他光学機器を設置。光学機器類が格納されているフランジを超伝導電磁石クライオスタット上部に設置(写真中央、右)。



### 5.2.2.2 高磁界下における磁性微粒子挙動の試験方法

最大磁束密度 10 T の無冷媒型超伝導電磁石 (JASTEC 製) を用いた。室温ボア径は 100 mm、最大励磁速度は 10 T/15 分である。計測対象の磁性微粒子は、図 2-4 に示した粒子径分布 300 nm – 300  $\mu$ m のフェライト系磁性微粒子と、フェライト系磁性微粒子に対して約 1/100 の磁化率をもつ磁化の弱い磁性微粒子 (粒子径分布 100 – 1000 nm) である。この磁気特性は、磁界 70000 A/m で磁化 4 A $\cdot$ m<sup>2</sup>/kg (emu/g) である。

超伝導電磁石を 4.6 K まで冷却し励磁可能な状態となったら、図 5-7 に示した粒子循環用のポンプを稼働させ、超伝導電磁石ボア内のガラスセル中に観察対象の磁性微粒子を所定の粒子速度で供給する。次にガラスセル側面へのレーザ照射を開始し、ガラスセル正面からマイクロスコープを介して高速カメラで粒子状態を 100 fps で確認する。ここで、粒子の観測位置は超伝導電磁石上端面から 90 mm 下方で、磁気勾配が最大となる地点である。磁性微粒子を超伝導電磁石下端から供給するため、超伝導電磁石励磁後の磁性微粒子には、超伝導電磁石中心に達するまでは浮力と同じく鉛直上向きに磁気力が作用し、超伝導電磁石中心より上方に存在している場合は重力と同じく鉛直下向きに磁気力が作用する。このため、粒子観測位置においては、磁性微粒子には鉛直下向きの磁気力が作用している。

粒子が流体セルへ安定的に供給されているのを確認後、粒子画像の録画を開始する。録画開始後 20 s 待つて超伝導電磁石の励磁を開始する。なお、励磁速度は電磁石の急激な温度上昇が生じない 3.0 T/10 分とした。最大磁束密度に達し定常磁界となった後、粒子画像の録画を停止した。その後、粒子画像録画を開始し、20 s 後に励磁速度と同じ 3.0 T/10 分で減磁を開始した。最後に超伝導電磁石発生磁束密度が 0 T となったのを確認したうえで録画を停止した。

録画した粒子動画は、画像処理ソフトを用いて画像内の複数の粒子の速度を算出し、超伝導電磁石発生磁界と粒子速度との関係を求めた。

### 5.2.3 高磁界下における磁性微粒子挙動の評価結果

#### 5.2.3.1 超伝導電磁石ボア内における磁性微粒子挙動可視化装置の動作確認結果

図 5-10 には、フェライト微粒子を対象とした可視化性能試験の結果一例を示した。なお、(a) は第 2 章～第 4 章で採用した可視化システムを用いた場合のレーザ照射による連続画像で、(b) は本章で用いる超伝導電磁石ボア内の可視化用システムによる連続画像である。粒子は画面下方から上方に向かって重力に逆らって流動しており、従来の可視化システム

における性能<sup>1)</sup>と同様に、ミー散乱やレイリ散乱による効果でマイクロオーダー前後の径の粒子散乱光も観察されている。

図 5-11 には、粒子流動用のポンプ出力を 0 – 1000 まで可変したときの粒子速度との関係を示した。ポンプから計測用ガラスセルまでの往復距離が長いために常伝導電磁石適用時に比べて圧損が増し流速が低下しているが、ポンプ最大出力で約 400  $\mu\text{m/s}$  の速度で粒子を駆動できることが確認できた。

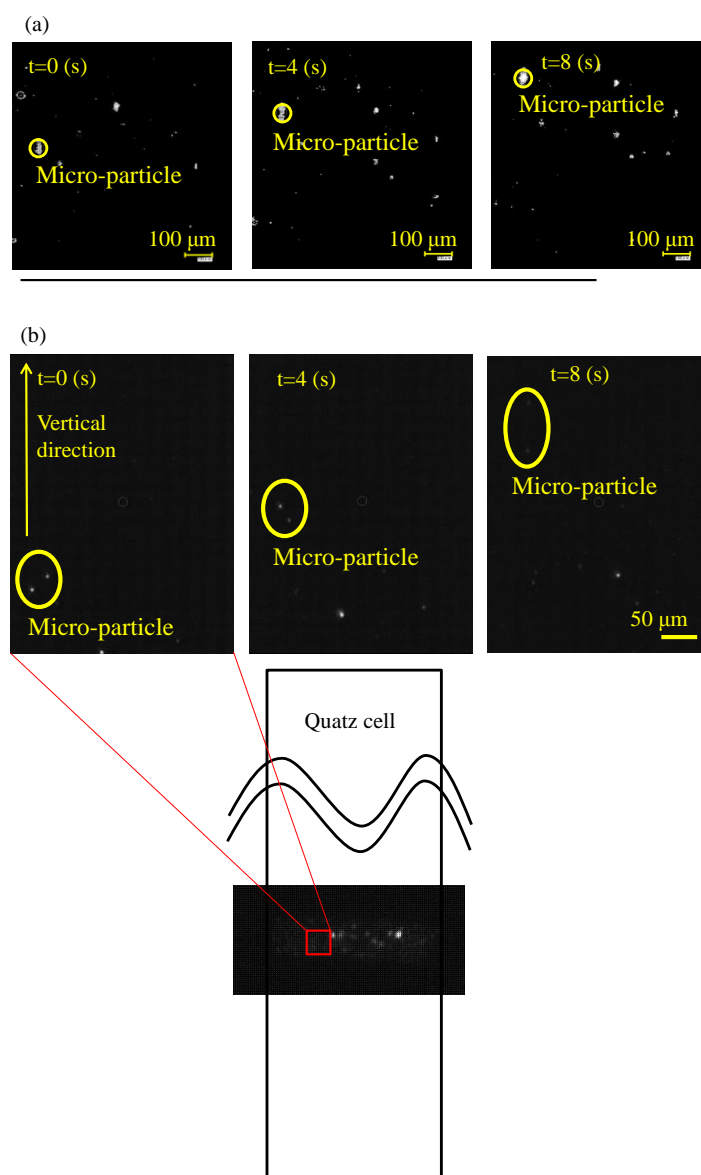


図 5-10 フェライト微粒子を対象とした可視化性能試験。(a)は従来のレーザ照射による可視化試験の連続画像、(b)は構築した超伝導電磁石ボア内可視化用システムによる可視化試験の連続写真。

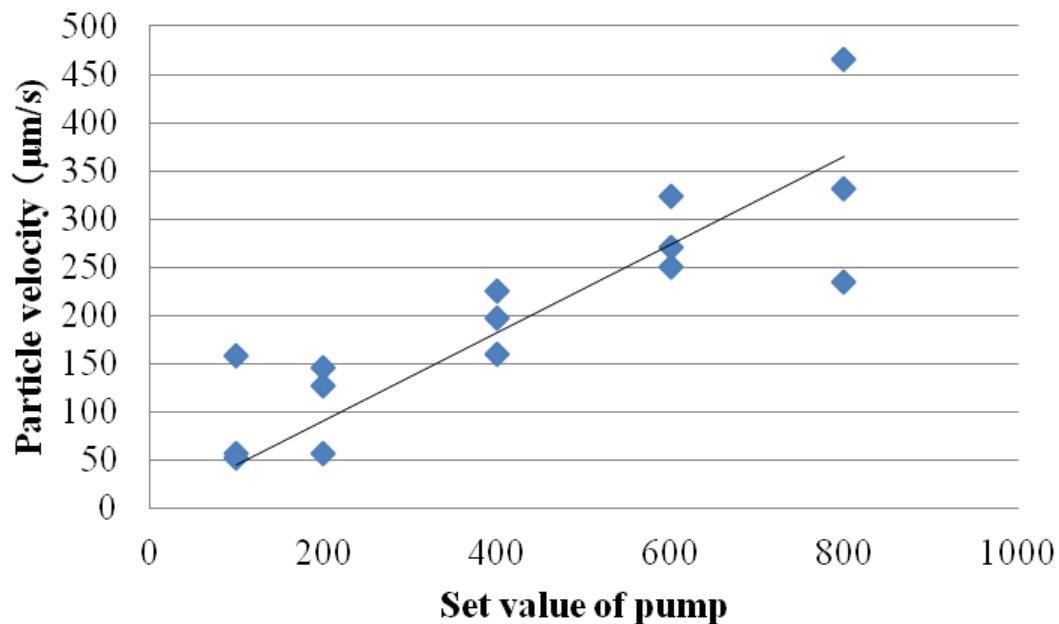


図 5-11 ポンプ指令値と粒子速度との関係。Setvalue は、流速調整用のポンプ回転量を表す。

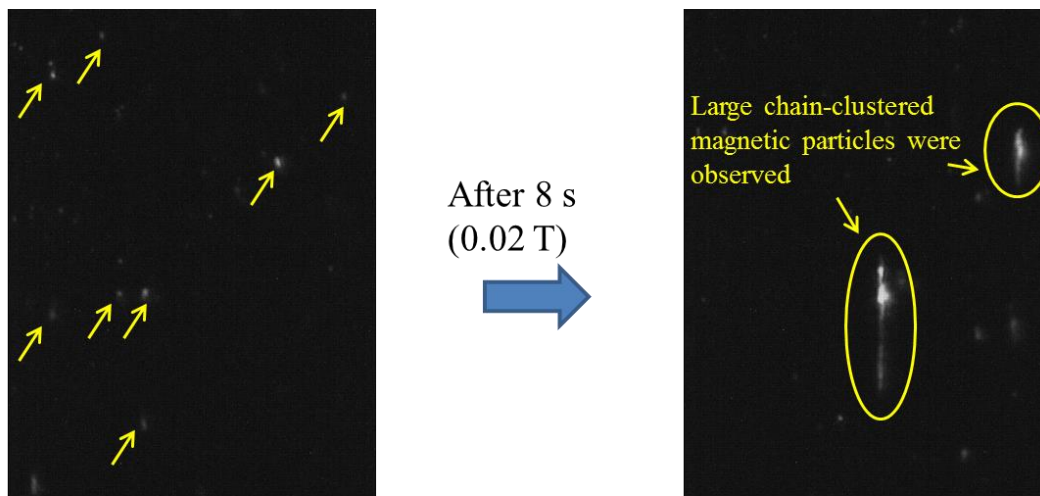
### 5.2.3.2 強磁性微粒子挙動の試験結果

実験に用いた磁性微粒子は、図 2-4 に示したフェライト系磁性微粒子である。周囲流体の流速を変化させて、粒子挙動を計測した。図 5-12 (a) はポンプによる強制循環が無い流体中で、磁束密度 1.69 T (観測地点磁束密度。超伝導電磁石中心磁束密度は 3 T) までの励磁過程における粒子挙動を観察した一例である。励磁後約 8 s 後 (観測地点磁束密度約 0.02 T) の画像ではすでにチェーン状に凝集したクラスタ粒子が観察された。一方、最大磁束密度に達する 10 分後には観察視野内にはほぼ粒子が存在しない状態となった。図 5-12 (b) には、0 T 時の粒子速度が約 270  $\mu\text{m/s}$  の流れ場中で、1.69 T までの励磁過程における粒子挙動を観察した一例を示した。流体が下方から上方に向かって流れているため励磁直後は磁性微粒子もすべて上方に向かって流れていた。しかしながら流れなしの場合と同様に励磁開始後数秒で粒子凝集が発生し、それらのクラスタ粒子は流れとは反対に下方へ磁気吸引される状態が観察された。また、流れによって磁性微粒子が下方から供給されるために励磁開始後 10 分 (観測地点磁束密度約 1.69 T) においても巨大クラスタ粒子は見られないものの、流れに準方向と逆方向へ移動する微小な粒子が観察された。

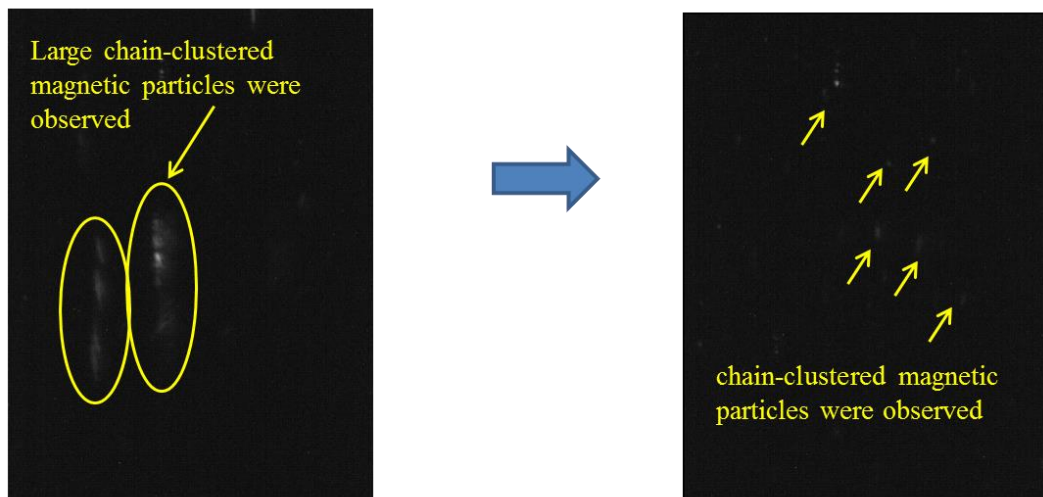
図 5-13 (a) と (b) には図 5-12 (b) と同様にポンプ強制循環ありの場合の励磁過程における連続粒子画像を示した。なお、図 5-13 (b) は (a) に対してマイクロスコープにお

る拡大率を 1/2.5 にした画像である。図 5-13 (a) では下方より流体からの流体抵抗によって輸送されてきた粒子に関して、約 1.3 T の磁界下によって生じる磁気力が流体抵抗に勝り、下方に引き戻される様子を表している。図 5-13 (b) においても下方に移動する粒子が多数見られる。また、この条件において励磁開始直後から磁性微粒子が完全に飽和していると考えられる約 0.25 T に至るまでの粒子速度を粒子トラッキングにより計測し図 5-14 に示した。

各磁束密度において、流れにそって上方へ輸送されている 3 個の磁性微粒子の粒子速度の平均値を縦軸に、観測地点における磁束密度を横軸に示した。励磁直後から流体抵抗によって上方へ輸送される磁性微粒子の粒子速度が急速に減速されており、一方、約 0.05 – 0.1 T 以上では粒子速度の減速の割合が緩和していることが示されている。これは、磁性微粒子が未飽和領域においては磁束密度の二乗に比例して磁気力が増加するため粒子速度に急激な減速が生じるのに対して、磁性微粒子が徐々に飽和し始めると磁束密度の一乗に比例した磁気力の増加となるため粒子速度の減速が緩和するためと考えられる。このように、磁性微粒子が飽和する磁束密度の周辺では、磁界応答性に顕著な違いが見られる事がわかった。



(a) 0 to 1.69 T (3 T at a bore center), Without water circulation

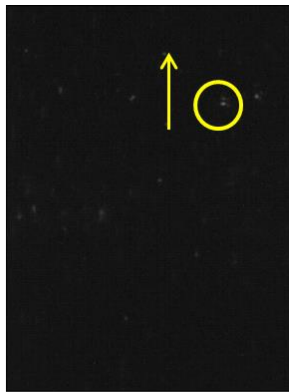


After 60 s (0.17 T)

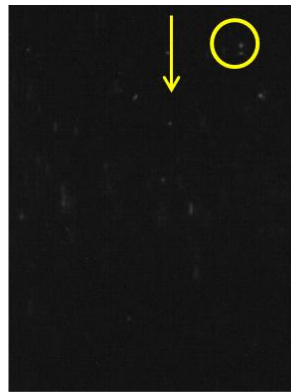
After 10 min (1.69 T)

(b) 0 to 1.69 T (3 T at a bore center), With water circulation (It means that particles are continuously supplied)

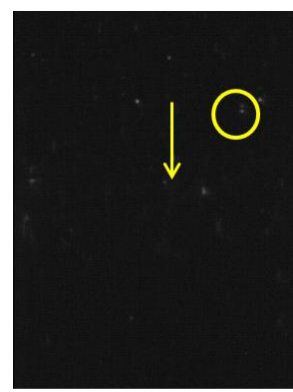
図 5-12 フェライト系磁性微粒子(強磁性体、未飽和から飽和領域へ)



489 s (1.26 T)

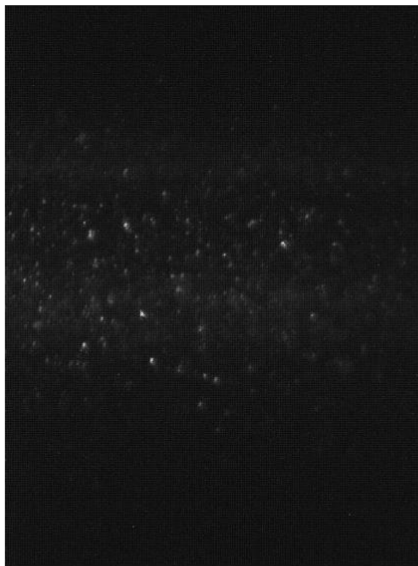


505 s (1.34 T)

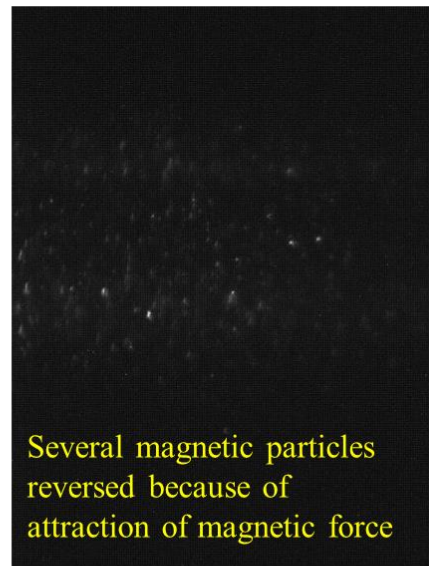


514 s (1.38 T)

(a) 0 to 1.69 T (3 T at a bore center), With water circulation



After 0 s (0 T)



After 517 s (1.38 T)

(b) 0 to 1.69 T (3 T at a bore center), With water circulation (Reduce magnification: 1/2.5 times)

図 5-13 フェライト系磁性微粒子(強磁性体、飽和領域)

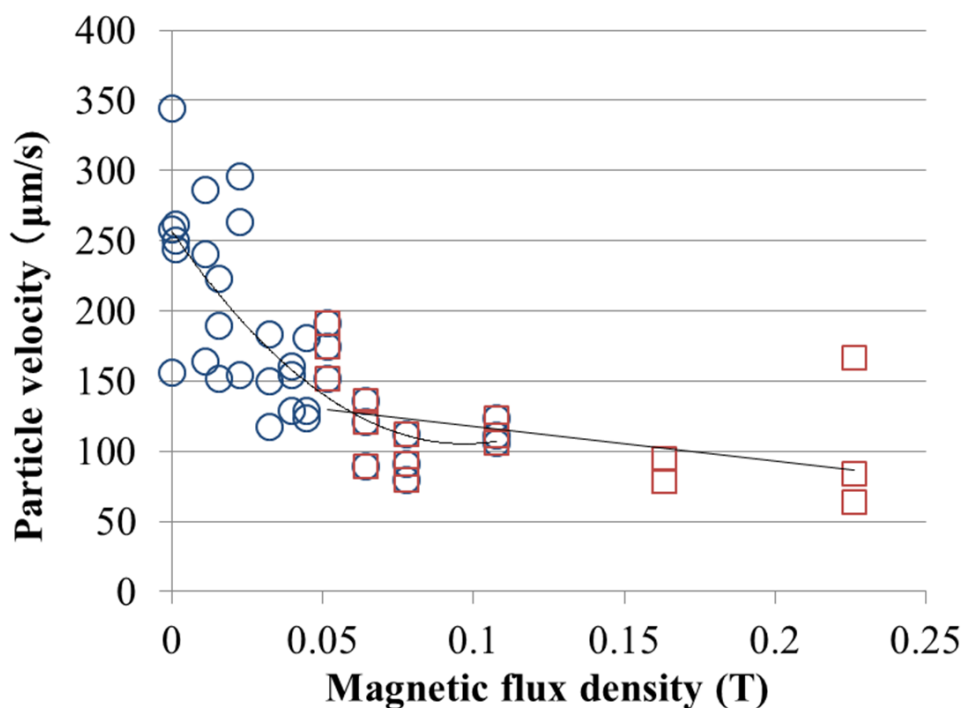


図 5-14 ポンプによる強制循環ありの条件下におけるフェライト系磁性微粒子（強磁性体、飽和領域）の粒子速度と観測地点の磁束密度との関係。粒子の流れる方向と反対向きに磁界を作用。磁束密度の増加に伴って、磁気力が減速力として働く。磁気飽和前は磁束密度の増加とともに急激に粒子速度が減衰しているが、磁気飽和が生じ始める約 0.1 T 以降において、粒子速度の減衰が緩和する。

次に、図 5-15 には重力沈降がほとんど見られない磁性微粒子を対象とした励磁過程における粒子画像を示した。

この観測においてはあらかじめ粒子循環ポンプによる強制流れを停止し、20 分以上励磁しない状態で静置し流路内に存在する数  $\mu\text{m}$  以上の粒子を完全に重力沈降させた。この結果、粒子沈降が観測できないほどに粒子に作用する重力が微小である粒子のみを観察領域内にとどめることができた。観察領域内で数  $\mu\text{m}$  以上の粒子移動が観察されないことを確認した後、粒子画像録画と 3 T までの励磁を開始した。図 5-15 に見られる粒子は約 0.5 T の磁束密度下において磁気吸引により下方へ有意な移動が観察された。次に、0 から 3 T に至る過程において、下方へ磁気吸引されている微粒子の粒子速度を粒子トラッキングにて算出し、図 5-16 に示した。散乱光を観察しているため、粒子径を計測することができないが、顕著な粒子沈降が見られない  $1 \mu\text{m}$  以下と推定される粒子を少なくとも約  $100 \mu\text{m/s}$  以上で磁



気吸引できることが示された。0.5 T 以上では粒子速度が増加しない傾向が見られているが、これは磁束密度が増加するに従い粒子径の相対的に大きな粒子は下方に吸引されてしまい、徐々に粒子径の小さい粒子、すなわち作用する磁気力小さい粒子が観察対象となっているためと考えられる。

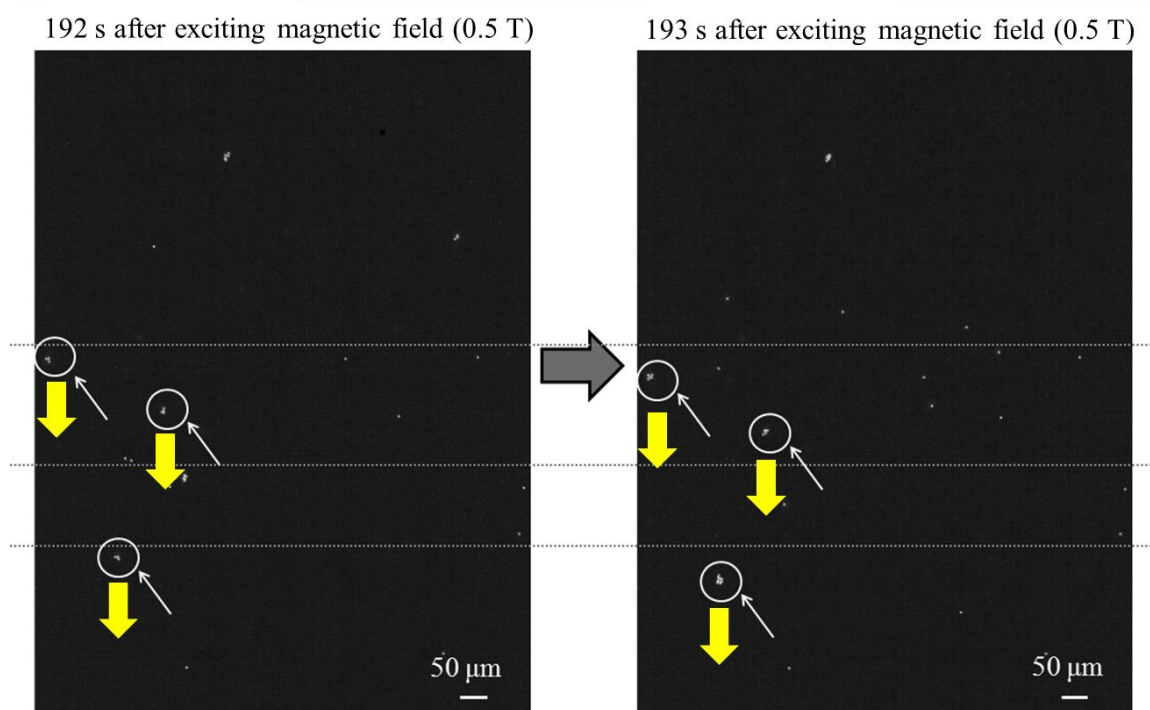


図 5-15 ナノ微粒子の挙動観察。20 分間静置することで、マイクロオーダーの磁性粒子は重力沈降で排除。その後、下方に磁気力を作用させることで、視野内で静止していた粒子は磁気力で下方に牽引されている(黄色矢印)。



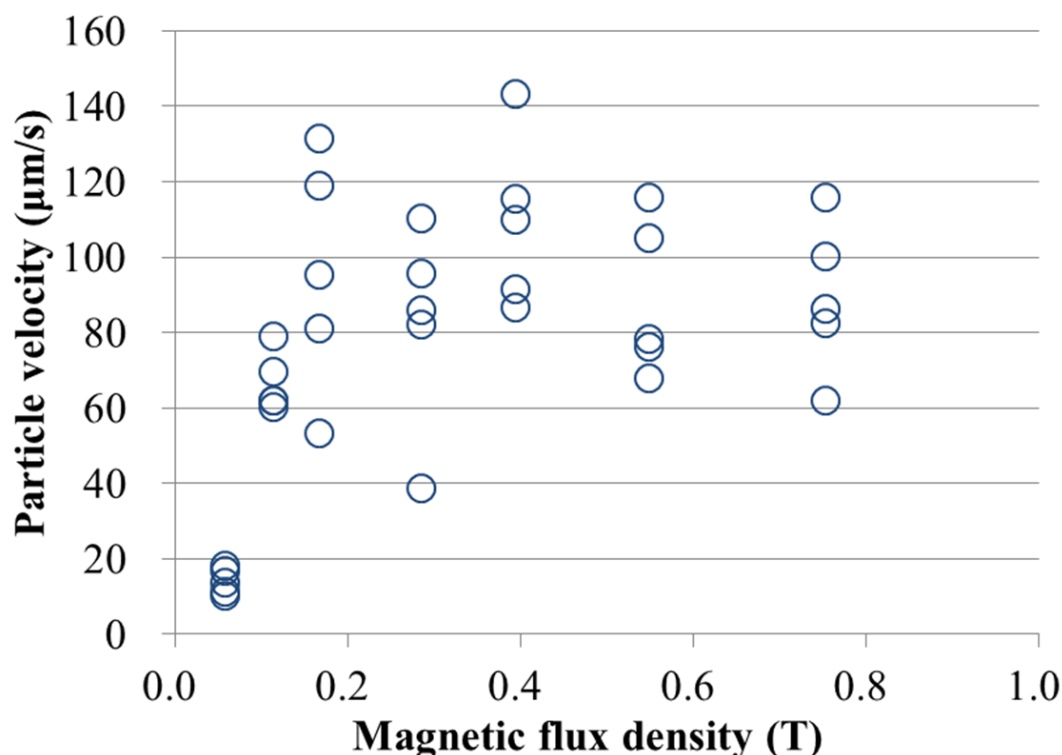


図 5-16 ナノ磁性粒子(強磁性体、飽和領域)の粒子速度と観測地点における磁束密度。図 5-15 の画像から計測した粒子速度。ナノオーダーと見なせる磁性微粒子は、0.5 T の磁界下において約 60 下に 140  $\mu\text{m/s}$  の粒子速度まで加速されることが示された。

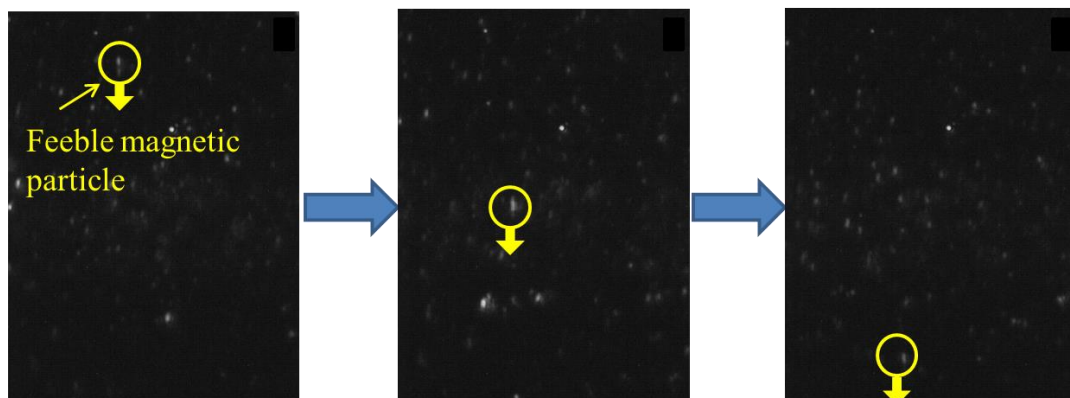
### 5.2.3.3 弱い磁化を持つ磁性微粒子挙動の試験結果

実験に用いた粒子は、図 2-4 に示したフェライト強磁性微粒子に比べて磁化が 1/100 程度の磁性微粒子(粒子径分布 100 – 1000 nm)である。はじめに粒子循環用ポンプを駆動し、0 T 時の粒子速度が約 270  $\mu\text{m/s}$  の流れ場中で 1.69 T(超伝導電磁石ボア中心は 3 T)まで励磁し粒子循環ポンプを停止した。その後 0 T まで減磁した。図 5-17 の上図には、粒子循環用ポンプを駆動した状態で 0 T から 1.69 T まで励磁した過程における粒子画像の一例を示した。なお、画像左側が鉛直下方向で右側が鉛直上方向を示している。粒子循環用ポンプの駆動により流体が下方から上方に向かって流れているため励磁直後は磁性微粒子もすべて上方に向かって流れていた。しかしながら約 0.3 T 以上の励磁下において、軽度にクラスタ化した粒子が流れとは反対に下方へ磁気吸引される状態が観察された。図 5-17 の下図には、粒子循環用ポンプを停止させた状態で 1.69 T から 0 T まで減磁する過程における粒子挙動を観察した一例を示した。観測地点の磁束密度は約 1.69 T まで増加させたが、観測倍率におい

では明確な粒子凝集は観測されなかった。図 5-17 の上図と比較してクラスタ化したと考えられる巨大粒子は見えないものの、上方と下方の両方向にゆっくりと移動している粒子が観察された。これらの粒子の速度を粒子トラッキングにより算出し、図 5-18 に示した。粒子循環ポンプで上向きの流れがあるとき (0–600 s) は流体抵抗に比べて磁気力が相対的に弱いため流体速度とほぼ一致している (図中、青丸)。粒子循環ポンプを止めて減磁していくと、磁束密度の減少に比例して磁気力に吸引されている下向きの粒子の速度も減少していく (図中、緑三角。完全に磁気飽和しているため、磁束密度の一乗に比例)。観測地点の磁束密度が 1.69 T 時には磁気力によって下方に約 20  $\mu\text{m/s}$  で吸引されていたが、約 0.5 T で 0  $\mu\text{m/s}$ 、すなわち下方に吸引される粒子はほぼ見られなくなった。初期の上向きの流体に牽引されている上向きの粒子の速度は、重力による影響のため徐々に減速している (図中、赤四角)。

以上の結果から、第 4 章まで用いていた磁気駆動用電磁石では発生できない 0.3 T 以上の磁界下においてはフェライト系磁性微粒子と比較すると 100 分の 1 程度に磁化の小さい磁性微粒子でも非接触磁気駆動が可能であることがわかった。また、図 5-17 に見られる粒子濃度であれば 1.5 T の磁界下にあっても顕著な粒子凝集が生じないことがわかった。

With water circulation, 65 – 68 s (0.18 – 0.19 T)



Without water circulation, 1.6 – 15.6 sec (1.69 – 1.65 T)

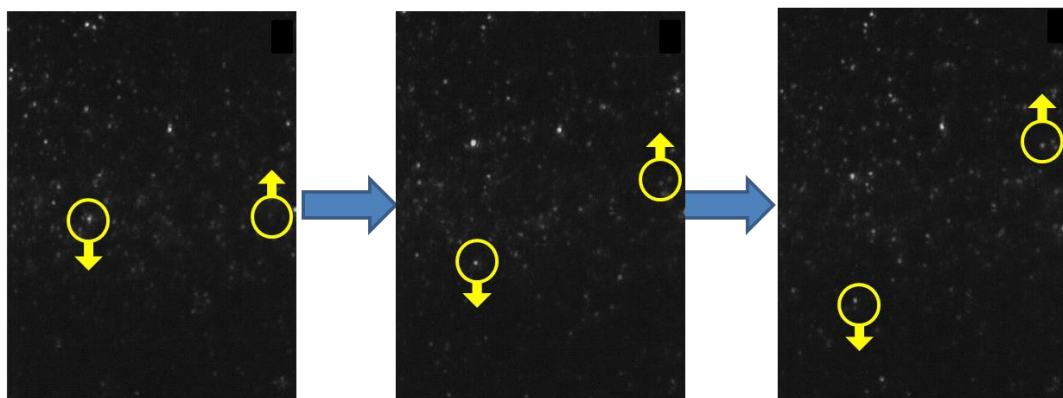


図 5-17 磁化の弱い磁性微粒子の挙動観察。上図は磁束密度を増加させていく過程の観察、下図は 1.69 T まで一旦磁束密度を増加させておいて、減少させていく過程の観察。磁気力は画面下方向に作用する。下図では、初期の上向きの流れがあるために上下方向に移動する粒子が混在している。

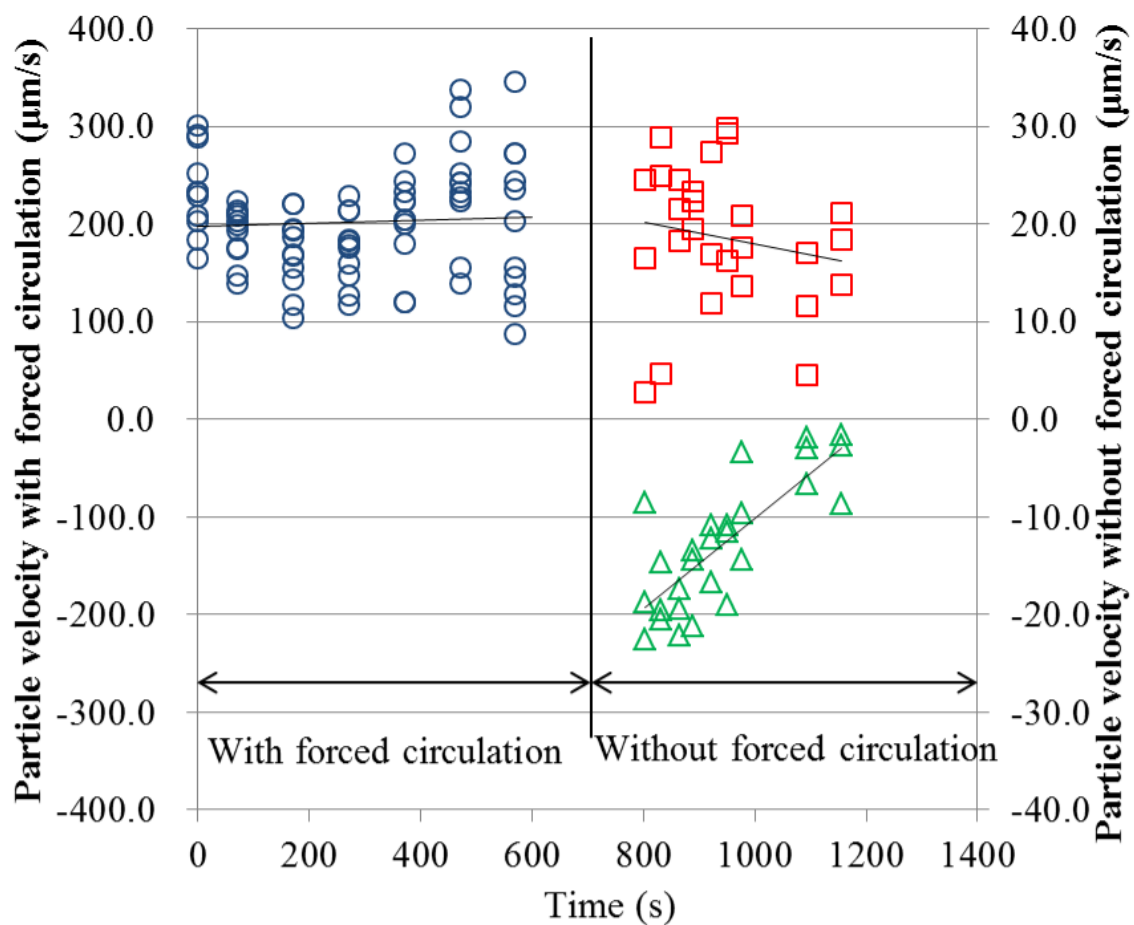


図 5-18 磁化の弱い磁性粒子の挙動観察。0 – 600 s で 1.69 T まで磁束密度を増加させ、600 – 800 s は 1.69 T を維持し、800 – 1400 s で 0 T まで減少させていく過程の画像から粒子速度を計測しプロット。粒子循環ポンプで上向きの流れがあるとき (0 – 600 s) は流体抵抗に比べて磁気力が相対的に弱いいため流体速度とほぼ一致 (図中、青丸)。粒子循環ポンプを止めて減磁していくと、磁束密度の減少に比例して磁気力に吸引されている下向きの粒子の速度も減少 (図中、緑三角。完全に磁気飽和しているため、磁束密度の一乗に比例)。約 0.6 T 以下では、磁気力が弱いためにほとんど粒子移動が見られない。初期の上向きの流体に牽引されている上向きの粒子の速度は、重力による影響のため徐々に減速している (図中、赤四角)。

## 5.3 高磁界下における磁性微粒子の非接触磁気駆動の可能性

### 5.3.1 ナノオーダー磁性粒子の挙動評価と非接触磁気駆動への展望

図 5-19 に、本研究、あるいは将来的な研究で視野にいられている対象物のおよその大きさを示した。細胞や毛細血管は数  $\mu\text{m}$  から数十  $\mu\text{m}$ 、アプリケーションの一つとして考えているドラッグデリバリーや環境浄化などに用いられる磁性微粒子の粒子径は 10 nm から数十  $\mu\text{m}$  である。

本研究では、約 30 nm の粒子まで可視化することができた。また、フィードバック制御を用いた磁気駆動は数  $\mu\text{m}$  までを対象とし、オープン制御による磁気捕集では数百 nm までを対象とした。今後、ブラウン運動や静電的な力が相対的に顕著になってくる粒子径数十 nm から数百 nm を対象に磁界作用下における磁性微粒子挙動や磁気駆動に関するさらなる研究を行い、産業分野やバイオ・医療分野における実利用につなげていくことが望まれる。

また、本研究では、可視化環境下での磁気駆動を主としたが、必ずしも適用範囲は可視化環境下に限らない。すなわち、磁気捕集後の磁気攪拌に関する検討で行ったように、良好な条件を模擬的な可視化環境下で探索し、実利用においては決められた励磁パターンに従ってオープンループ制御で駆動する、あるいは、同等な粒子径を持つ二つの粒子の磁気ガイドで示したように、模擬環境を作り出して、観察不可能な条件下でマスタースレーブのような追従制御による粒子駆動を行う、など実利用に向けた応用研究が期待される。

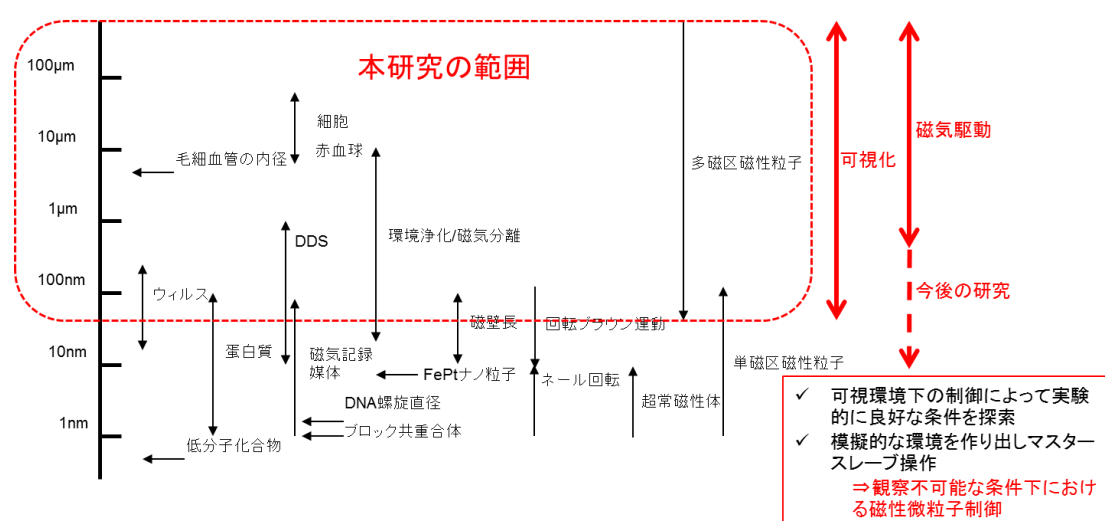


図 5-19 本研究、及び将来、目指すべき駆動対象のサイズ

上述のように本研究では、ナノオーダー磁性微粒子については前節で超伝導電磁石発生磁界下における磁界応答性、すなわち磁気吸引時の挙動を観察するにとどめており、非接触磁気把持や作用力計測、非接触磁気操作に関してはマイクロオーダーの強磁性微粒子のみを対象とした。今後ナノオーダーを含めて磁性微粒子を精度良く非接触磁気駆動するためには、ナノオーダー磁性微粒子に作用すると考えられる力の評価、及びそれを駆動させるための磁性微粒子制御装置の改良が望まれる。そこでここでは、第2章から第4章にかけて用いた各種作用力を試算するための計算式と以下に示すブラウン運動力を考慮するための計算式とを用いて第4章で使用了磁性微粒子の磁気駆動用電磁石の性能を評価した。

ブラウン運動は、以下であらわされる<sup>2)</sup>。

$$F_h < \frac{kT}{D_p} \quad (5-1)$$

ここで、 $F_h$ はブラウン運動により粒子に作用する力、 $D_p$ は粒子の直径、 $k$ はボルツマン定数、 $T$ は絶対温度を表す。

今、粒子径 500 nm の磁性微粒子の非接触磁気駆動を想定する。現状の磁気駆動用電磁石を用いる場合、最大発生可能磁気力が 0.016 pN に対して、流体抵抗力が 0.051 pN（最大で 10  $\mu$ m/s での駆動を想定）、ブラウン運動による作用力が 0.008 pN、重力が 0.002 pN となり、重力よりもブラウン運動による作用力が支配的になり粒子沈降は生じにくいものの、磁気力が流体抵抗より小さいために、磁気力による粒子駆動は不可能と予想される。よって今後、現状の磁気駆動用電磁石の発生可能磁気力を 5 倍～6 倍増加させることが少なくとも必要となる。達成するための方針としては、磁極間距離と磁極面積の縮小が候補となる。図 5-20 に、電磁界解析により決定した磁気駆動用電磁石の構成を示した。なお従来の左右と上下方向の電磁石のみならず、前後方向の微粒子の挙動も制御するために、あらたに空芯のソレノイド型電磁石を前後方向に 1 台ずつ可視化システムの視野の妨げにならないよう配置した。本提案の磁気駆動用装置によってナノ磁性微粒子の挙動把握、及びこれらの知見を基にした非接触磁気駆動を実証することが望まれる。

次に、これまでは、実験的手法によりナノオーダー磁性微粒子の非接触磁気駆動を実現する方法について検討してきたが、次節では理論的手法によりナノオーダー磁性微粒子の挙動を把握し新たな磁気駆動方法を提案可能とすべく、粒子挙動解析手法の構築を行った。

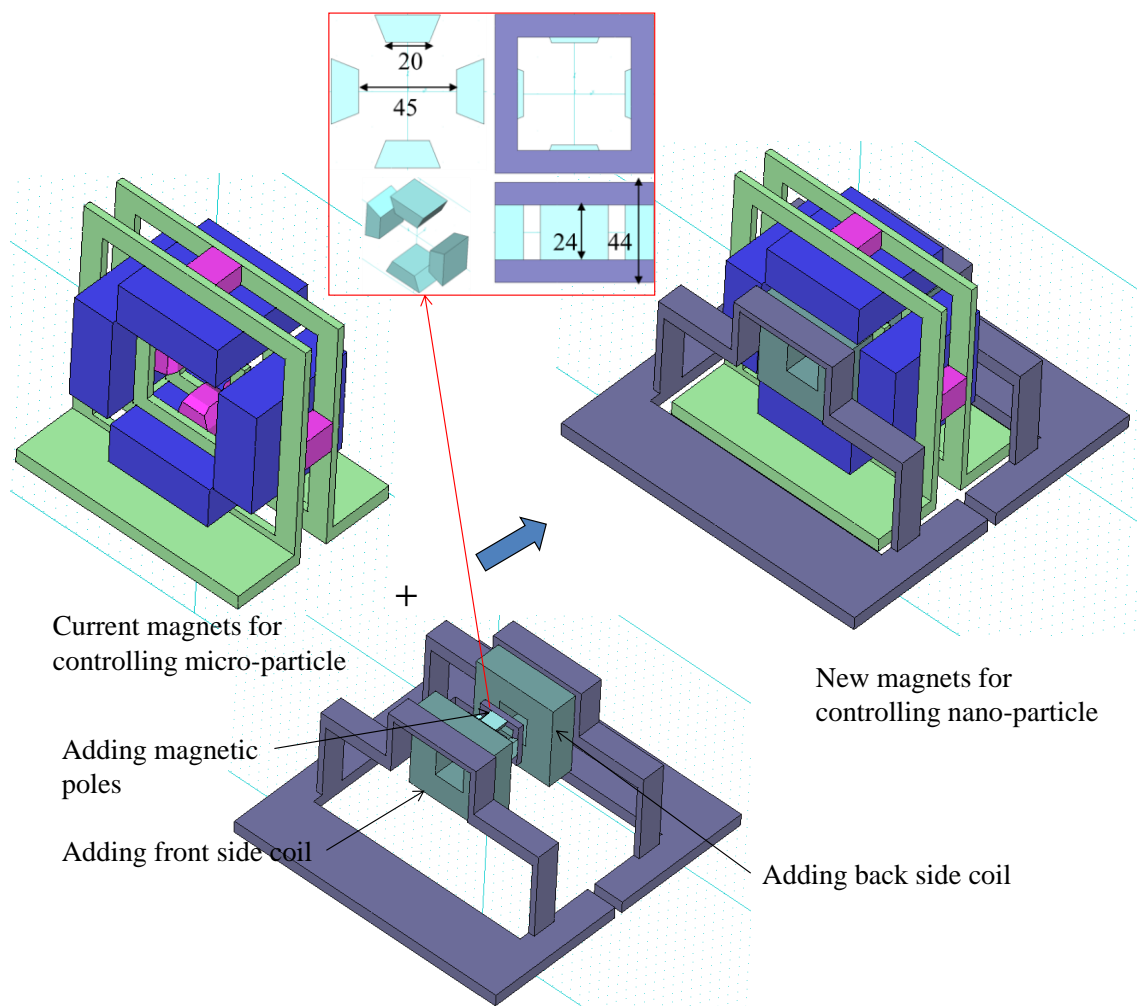


図 5-20 ナノ粒子制御に向けた磁性微粒子制御装置構成

## 5.3.2 粒子挙動解析手法

### 5.3.2.1 磁界と流体中粒子との一方向連成解析手法

粒子を解析する手法としては、特定の粒子や液滴に着目して位置や速度を求めるラグランジュ法と、粒子群を連続体と見なして特定の粒子に着目せずに速度を求めるオイラー法に大別される。本研究では個々の磁性微粒子の位置を求めることが目的であるため、粒子を解く方法としてはラグランジュ法を採用する。また、粒子が流体から受ける力や粒子が流体に与える力も考慮することから、流体についてはオイラー法によって双方向連成で解析を行う。

非接触磁気駆動を対象とした粒子挙動解析では、磁界解析と粒子／流体解析とを連係させて解析する必要がある。本章では既存の解析コードを利用するため、磁界解析では JMAG（株式会社 JSOL）を用い、流体解析では FLUENT（ANSYS, INC.）を用い、必要な物理量を

受け渡すインターフェースプログラムを構築することで磁性微粒子駆動の解析検討を目標とした粒子挙動解析を行う。なお本節では第一ステップとして、磁化特性の変わらない磁性微粒子を対象とした粒子挙動解析の構築と動作確認までを目標とし、磁性微粒子の磁気特性的な飽和現象は考慮しない。磁気飽和現象の考慮については、第 5.3.2.3 で検討を行う。

図 5-21 に粒子挙動解析の概念図を示す。図 5-21(a)は磁界解析用の磁気駆動用電磁石のモデル図である。第 3 章から第 4 章までの実験データから空間的、時間的に変動する磁界下でのマイクロオーダーの磁性微粒子の挙動モデルを図 5-21(b)のように考える。すなわち、磁性微粒子に作用する主な力や場としては、磁性微粒子の磁気駆動用電磁石からの磁界による磁気力と、磁性微粒子の磁気モーメントと外部磁界の方向が異なる場合に作用する磁気トルク、電磁石による磁界によって磁性微粒子自身が磁化し発生させる磁界とそれによる粒子間磁気力が考えられる。ここで、磁気トルクによる粒子の回転挙動については、瞬時に磁界の方向に配向することから本章では常に磁界の方向と磁気モーメントの方向は一致していると見なす事とする。

次に、磁化した磁性微粒子が作る磁界による粒子間磁気力の計算については次のように行う。ある磁性微粒子が周囲につくる磁界は、図 5-22 に示すような微小な円電流が遠方に作る磁束密度として求めることができる。その結果、任意地点における磁性微粒子がつくる磁束密度は前述したように、式 3-4 から算出され、式 3-3 から粒子間磁気力が計算できる。よって、粒子間磁気力  $F_{bet}$  は次のように表すことができる。

$$F_{bet} = (K_1 \times (1 + K_2 \times (D_{p2}/L_p)^3) \times (D_{p1})^3 \times (D_{p2})^3 \times L_p^{(-4)} \times B^2 \quad (5-2)$$

ここで、 $D_{p1}$  と  $D_{p2}$  は吸引しあう粒子の直径、 $L_p$  はそれらの粒子間距離、 $B$  は磁束密度を表す。 $K_1$  と  $K_2$  は各粒子の磁化率に依存する係数である。本節では粒子挙動解析の動作確認を行うにあたり、 $D_{p1}$  と  $D_{p2}$  を  $10 \mu\text{m}$ 、 $L_p$  を  $20 \mu\text{m}$ 、 $\chi_{p1}$  と  $\chi_{p1}$  を 2.28 とした場合の  $K = (K_1 \times (1 + K_2 \times (D_{p2}/L_p)^3) = 5.54 \times 10^5$  の定数を用いることとする。すなわち、粒子間磁気力は簡易的に次の式で計算する。

$$F_{bet} = 5.54 \times 10^5 \times (D_{p1})^3 \times (D_{p2})^3 \times L_p^{(-4)} \times B^2 \quad (5-3)$$

なお、本研究では近接する磁性微粒子同士の吸引挙動は模擬するものの、粒子の結合や分離に関するモデル化は今後の課題とする。すなわち、粒子間の距離がお互いの半径の合計以下になると近接磁性微粒子による粒子間の吸引力は働かないものとした。また、シミュレーションにおいて粒子は球体を仮定した。



シミュレーションの手順としては、図 5-21(a)のような解析モデルを作成し磁界解析コード **JMAG** によって磁性微粒子の磁気駆動用電磁石を対象とした磁界解析を実施し、磁性微粒子が封入されている流体セル内の磁界分布の時間変化を算出する。次に、インターフェースプログラムによって、流体解析コード **FLUENT** に **JMAG** で算出した磁界分布の時間履歴データと、磁性微粒子の磁気特性である磁化率や粒子径、粒子初期座標、初期速度などのデータを受け渡す。**FLUENT** では、磁界分布の時間履歴データから各時刻における磁気勾配をあらかじめ算出しておき、これらのデータをもとに、前述した磁性微粒子に作用する力や場を算出し、ラグランジュ法+オイラー法にて粒子軌道を求める。図 5-21(c)は粒子／流体解析によって得られる磁性微粒子挙動のイメージ図（磁気力を作用させることで移動、あるいはクラスタ化して薄い粒子から濃い粒子の位置関係に変化する）を表す。

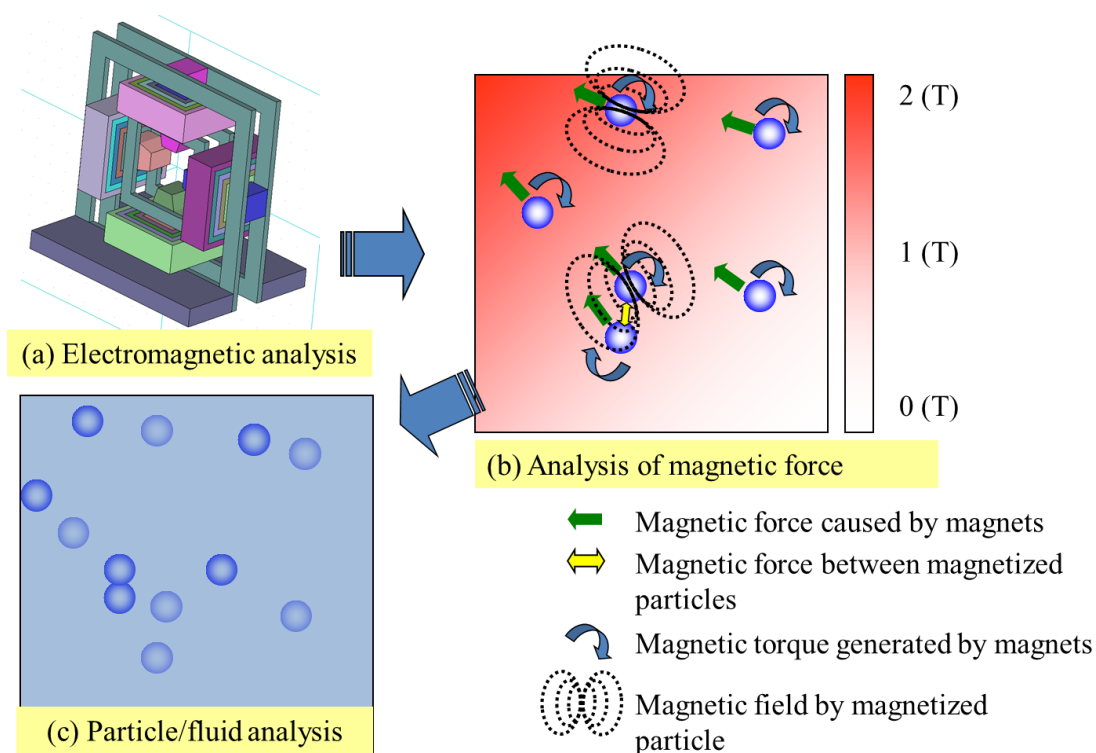


図 5-21 磁性微粒子制御を対象とした粒子シミュレーションの概念図。(a)は磁界解析用の磁気駆動用電磁石のモデル図、(b)は磁性微粒子に作用する主な力、(c)は粒子／流体解析によって得られる磁性微粒子挙動のイメージ図（磁気力を作用させることで移動、あるいはクラスタ化して薄い粒子から濃い粒子の位置関係に変化する）を表す。

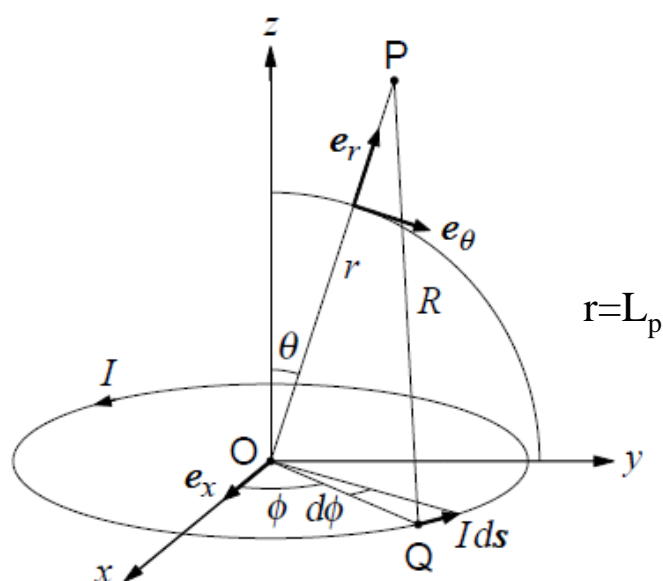


図 5-22 円電流によって遠方に作られる磁界

#### 5.3.2.2 磁界と流体中粒子との一方向連成解析手法の検証

図 5-23 に解析モデルと FLUENT に受け渡す磁界分布の一例を示す。現象を簡易化するために、励磁条件としては上側の電磁石にのみ 1/4 正弦波状の電流を 2 Hz で流すものとした。図 5-24 には粒子挙動解析結果の一例を示す。あらかじめ磁極間ギャップ中心位置に 20 個の磁性微粒子が初期速度 0 で存在しているものとする。なお各粒子には、表 5-4 に示すような初期条件を与えた。なお、粒子間距離を時々刻々と変動させて粒子同士の影響を確認しやすくする事を考慮し、磁化率や粒子径、密度を個々の粒子で変えてある。図 5-24 上段は磁界が作用しないとした場合の粒子挙動で、下段は上向きの磁気力が作用した場合の粒子挙動である。前者は、重力によって粒子が沈降していく様子が解析され、後者の場合は上方に吸引されていく様子が解析されていることから、外部磁界による磁気力の計算アルゴリズムが正常に FLUENT に組み込まれ動作していることを確認できた。

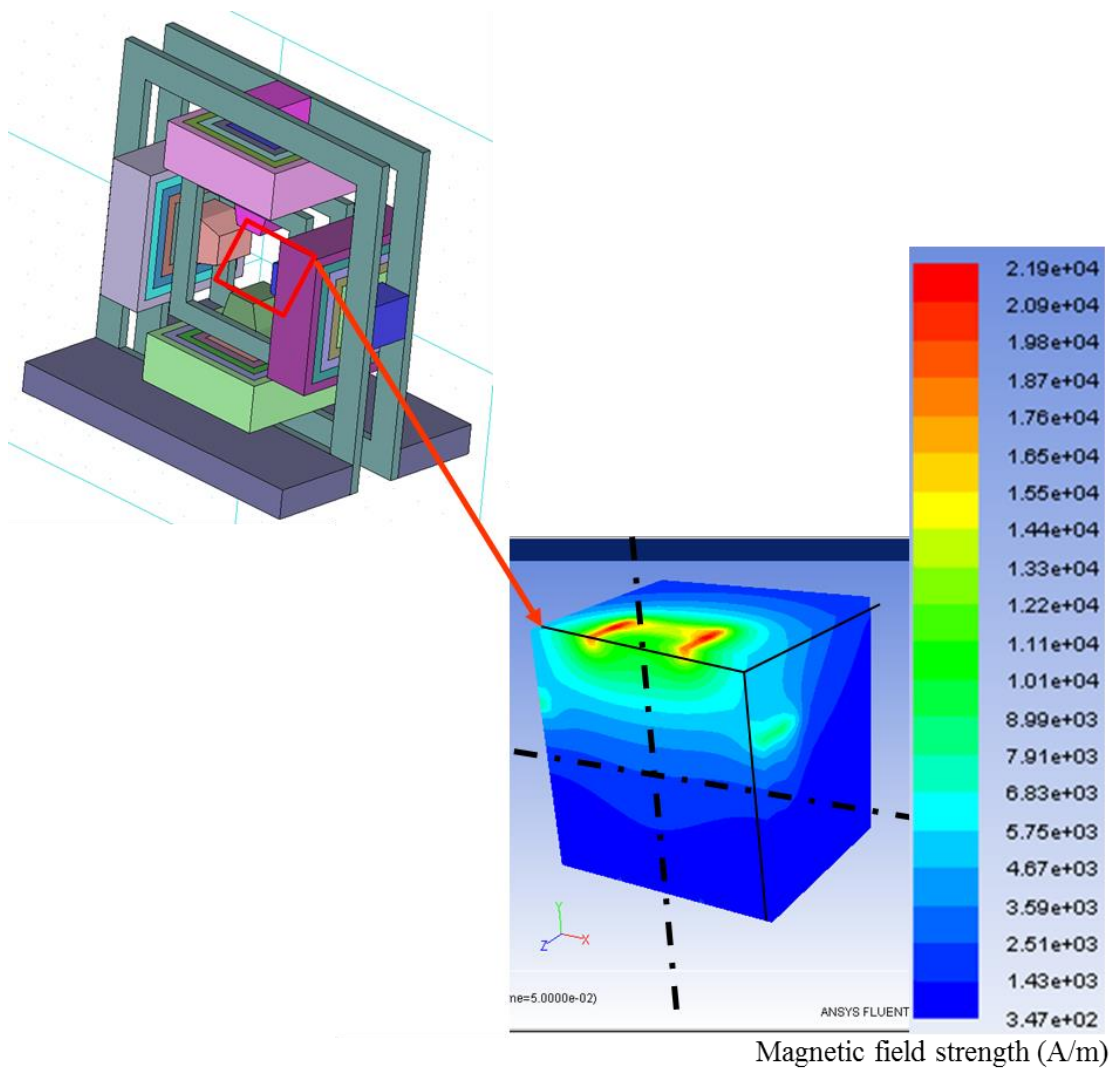


図 5-23 粒子挙動解析モデル(左)と粒子挙動解析に用いた磁界分布(右)

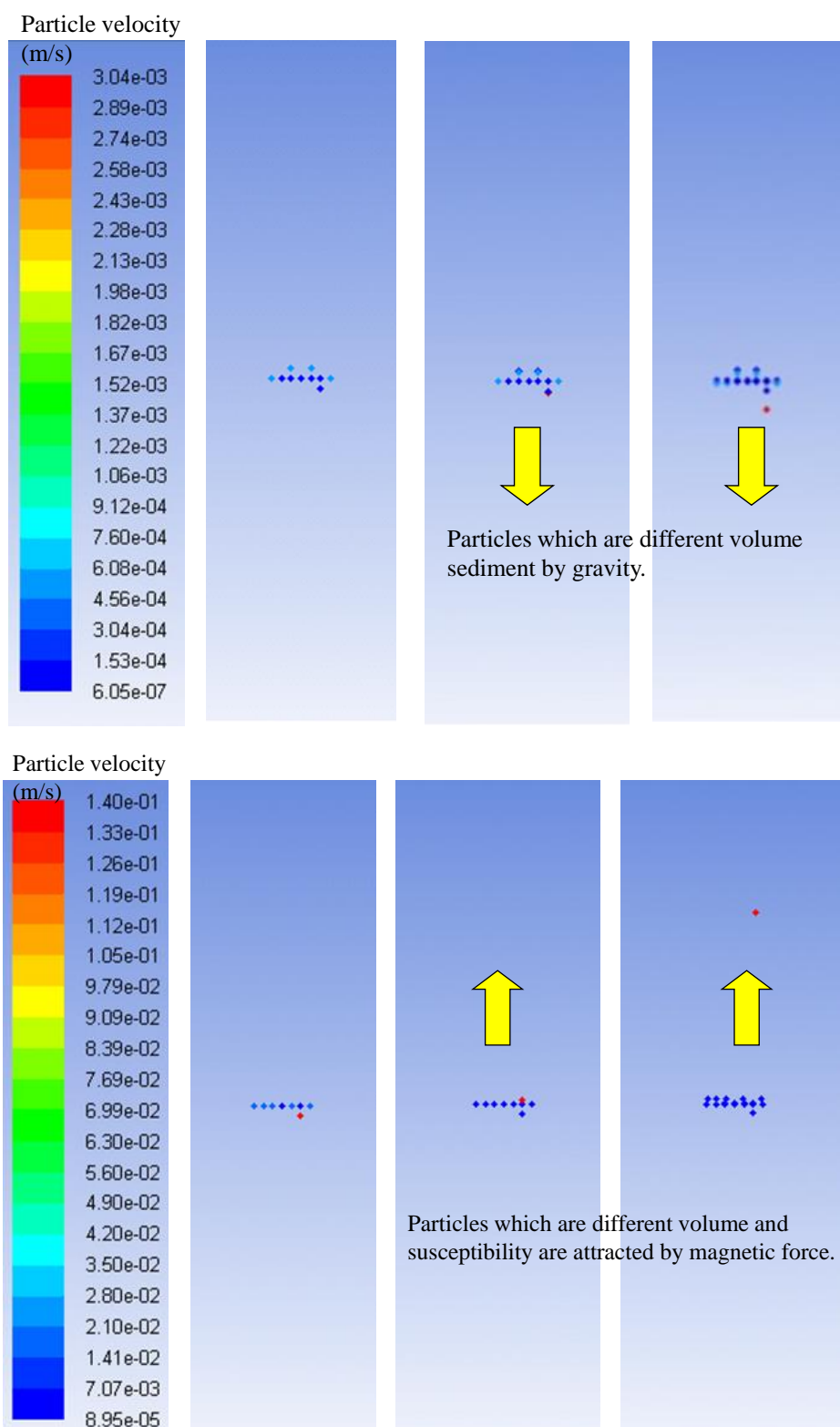


図 5-24 粒子挙動解析例(磁気力なし(上)、磁気力あり(下)、近接粒子による磁界は考慮なし)。磁気力なしの場合、重力沉降を生じ、磁気力があると上方に移動。

次に、近接磁性微粒子が作る磁界による粒子間磁気力の計算アルゴリズムが想定どおりに考慮されているか確認した。磁化率による粒子挙動の違いも確認するため、解析条件を、励磁電流波形は矩形波 (0.56 – 0.17 A, 2 Hz)、粒子径は 100  $\mu\text{m}$ 、磁化率は 0.5、2.5、4.5、16.5、18.5 である粒子が各 4 個ずつギャップ中心部に初期速度 0 で存在しているものとした。図 5-25 には外部磁界による磁気力のみを考慮した粒子挙動解析結果を示した。大きな磁化率をもった磁性微粒子が最も早く上部側磁極面に衝突し、2 周期で多くの磁性微粒子が上部側磁極に吸引されている粒子挙動が解析によって得られた。一方、図 5-26 には外部磁界による磁気力に加え、近接磁性微粒子による粒子間磁気力を考慮した場合のシミュレーション結果を示した。ここでは、計算アルゴリズムの動作確認を簡易的に行うために、粒子間距離に反比例した一定の力が粒子間に作用する式を組み込んだ。また、粒子間の吸引判定の回数を限定するために、吸引判定を行う粒子間距離を、図 4-6 を参考に 500  $\mu\text{m}$  以内とした。さきほどの外部磁界の磁気力のみの場合に比べ、解析初期において、隣接する粒子同士の吸引挙動が確認でき、その後はまとまった状態で上部側磁極に吸引されていく様子が解析によって確認できた。粒子間の吸引挙動では、粒子の結合や分離は考慮しないため、局所的に粒子同士が振動することであたかも一体粒子のように振舞わせている。

以上の結果から、外部磁界による磁気力と隣接する磁性微粒子が発生する磁界による粒子間磁気力の考慮が可能であることが確認でき、磁界と粒子/流体との一方向連成による粒子挙動解析の基礎的な目標を達成できた。次節では、より一般的なケースに対応できるよう磁氣的な飽和を考慮するアルゴリズムについて検討する。

表 5-4 粒子挙動解析に用いた各粒子の初期条件

Particle number	Coordinates, X(m)	Y(m)	Z(m)	Magnetic susceptibility(H/m)	Diameter ( $\text{m}^3$ )	Density ( $\text{kg}/\text{m}^3$ )
1	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	1.5	1.00E-05	2000
2	1.50E-03	0.00E+00	0.00E+00	1.5	1.00E-05	2000
3	-1.50E-03	0.00E+00	0.00E+00	1.5	1.00E-05	2000
4	3.00E-03	0.00E+00	0.00E+00	1.5	1.00E-05	2000
5	-3.00E-03	0.00E+00	0.00E+00	2	2.00E-05	2000
6	4.50E-03	0.00E+00	0.00E+00	2	2.00E-05	2000
7	-4.50E-03	0.00E+00	0.00E+00	2	2.00E-05	2000
8	1.50E-03	1.50E-03	0.00E+00	2	2.00E-05	2000
9	-1.50E-03	1.50E-03	0.00E+00	2	2.00E-05	2000
10	3.00E-03	-1.50E-03	0.00E+00	2.5	5.00E-05	2000
11	-3.00E-03	-1.50E-03	0.00E+00	2.5	5.00E-05	3000
12	0.00E+00	3.00E-03	0.00E+00	2.5	5.00E-05	3000
13	0.00E+00	-3.00E-03	0.00E+00	2.5	5.00E-05	3000
14	3.00E-03	3.00E-03	0.00E+00	2.5	5.00E-05	3000
15	-3.00E-03	3.00E-03	0.00E+00	2.5	1.00E-05	3000
16	3.00E-03	-3.00E-03	0.00E+00	3	1.00E-05	3000
17	-3.00E-03	-3.00E-03	0.00E+00	3	1.00E-05	3000
18	5.00E-03	-5.00E-03	0.00E+00	3	2.00E-05	3000
19	-5.00E-03	-5.00E-03	0.00E+00	3	2.00E-05	3000
20	0.00E+00	5.00E-03	0.00E+00	0.1	2.00E-05	3000

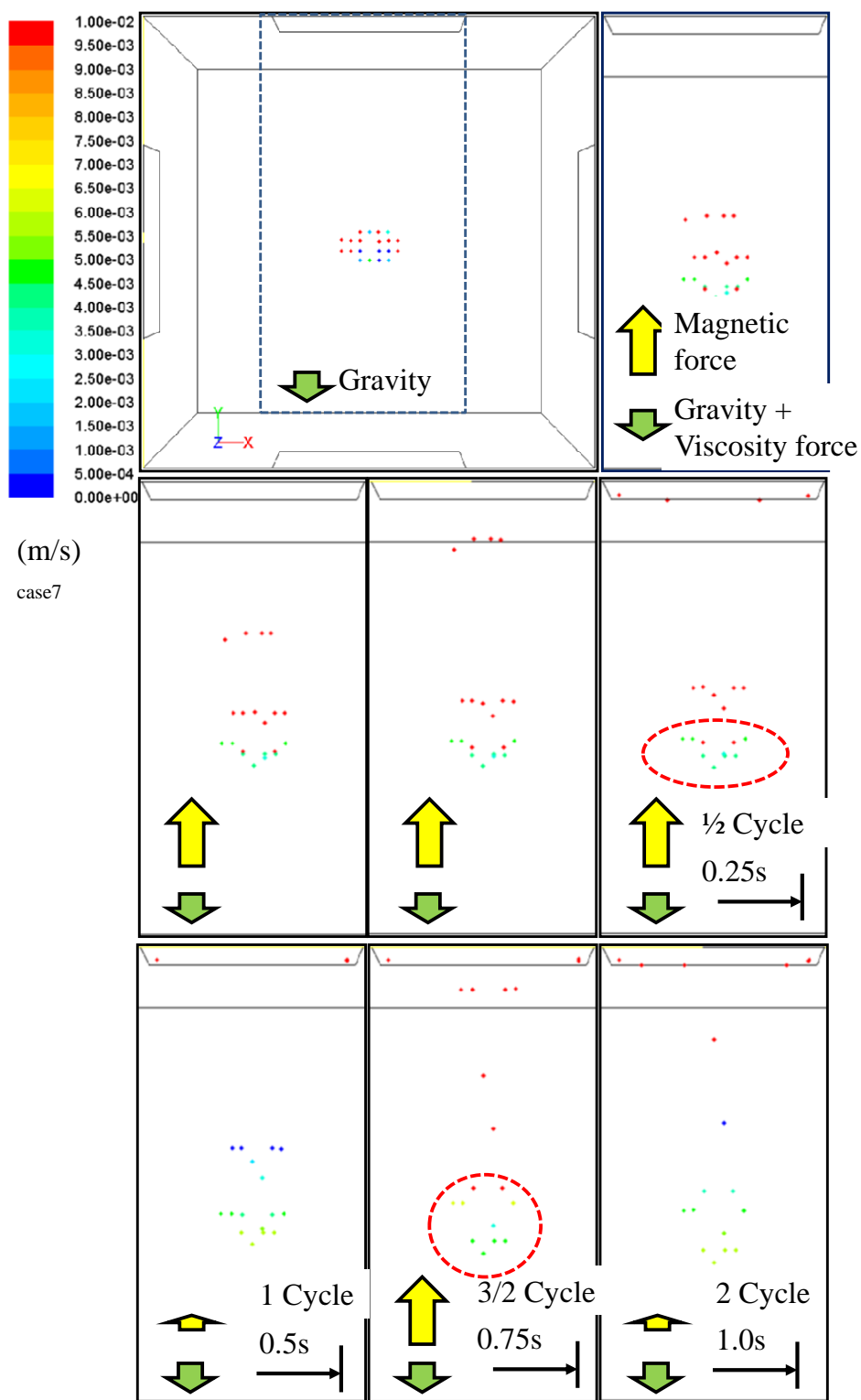


図 5-25 外部磁界による磁気力のみ考慮した粒子挙動解析結果: 矩形波(0.56-0.17 A, 2 Hz)、粒子径 100  $\mu\text{m}$ , 磁化率(0.5, 2.5, 4.5, 16.5, 18.5 が 4 粒子ずつ)。図中、赤丸で囲われた箇所が図 5-25 と比較して顕著に挙動が異なる。

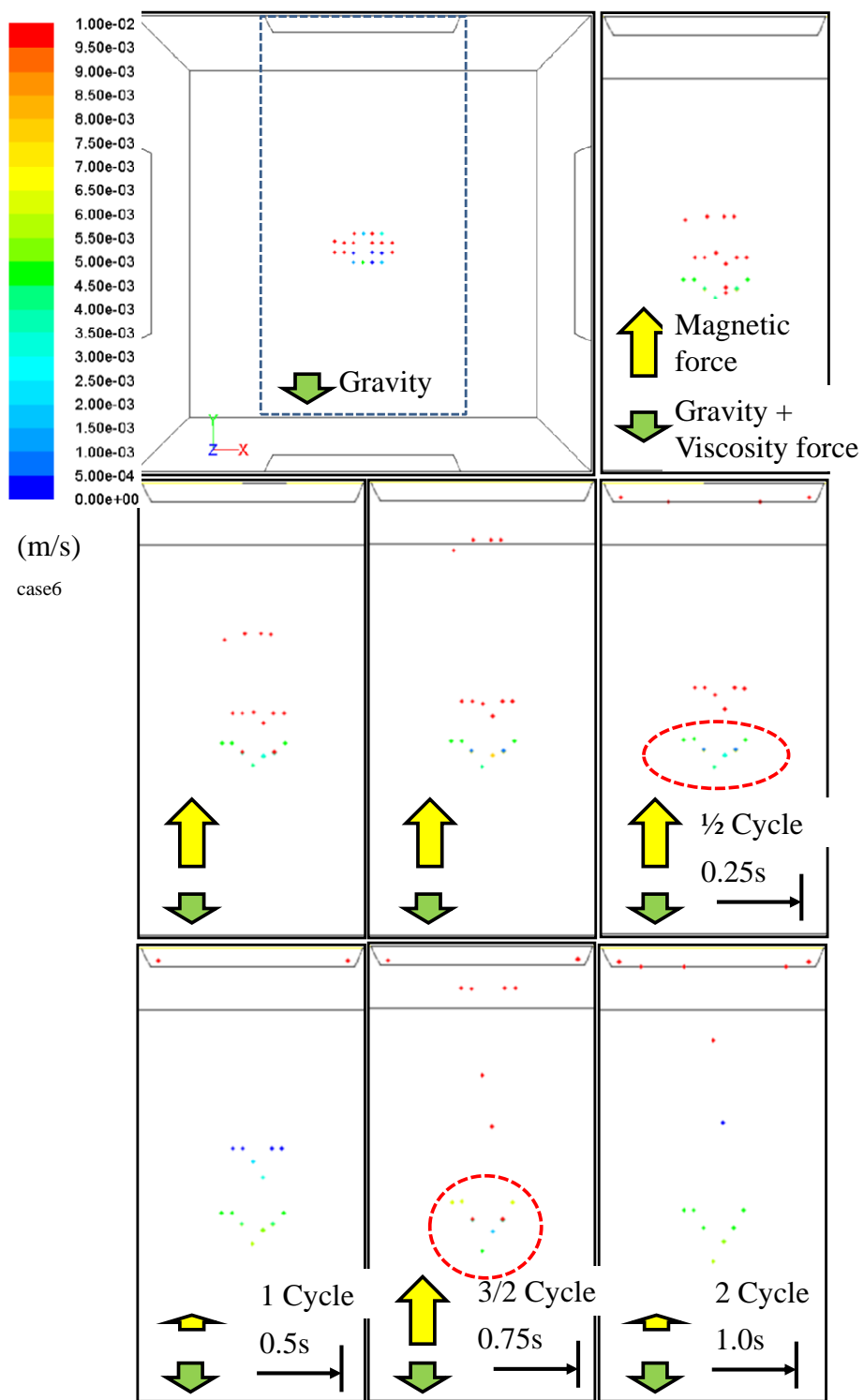


図 5-26 粒子間磁気力も考慮した粒子挙動解析結果: 矩形波(0.56-0.17 A, 2 Hz)、粒子径 100  $\mu\text{m}$ , 磁化率(0.5, 2.5, 4.5, 16.5, 18.5 が 4 粒子ずつ)。図中、赤丸で囲われた箇所が図 5-24 と比較して顕著に挙動が異なる。

### 5.3.2.3磁気飽和を考慮した磁性微粒子挙動解析手法

本節では、第 5.3.2.1 で構築した粒子挙動解析において磁性微粒子の磁気飽和現象を考慮できるようにアルゴリズムの追加を検討した。

これまでは系内に投入する粒子に固定の磁化率を定義し、磁化率一定の解析であったが、各時間ステップ、粒子ごとに磁気力を計算する際に、その時点での磁化と飽和磁化を比較して飽和磁化の値を超えていたら磁化を飽和磁化に変更する判定を追加した。ただし、図 5-27 に示した  $M-H$  カーブのように磁化は線形に変化するものとした。また、近接磁性微粒子が発生する磁界による粒子間磁気力については、第 4 章で得られた磁束密度の二乗と粒子間磁気力との関係式（図 4-5）を用いるように変更した。なお、磁気飽和前は磁束密度の二乗に比例した粒子間力を用いるのに対して、磁気飽和と判定されたら磁束密度の一乗に比例した粒子間力が作用するようにした。

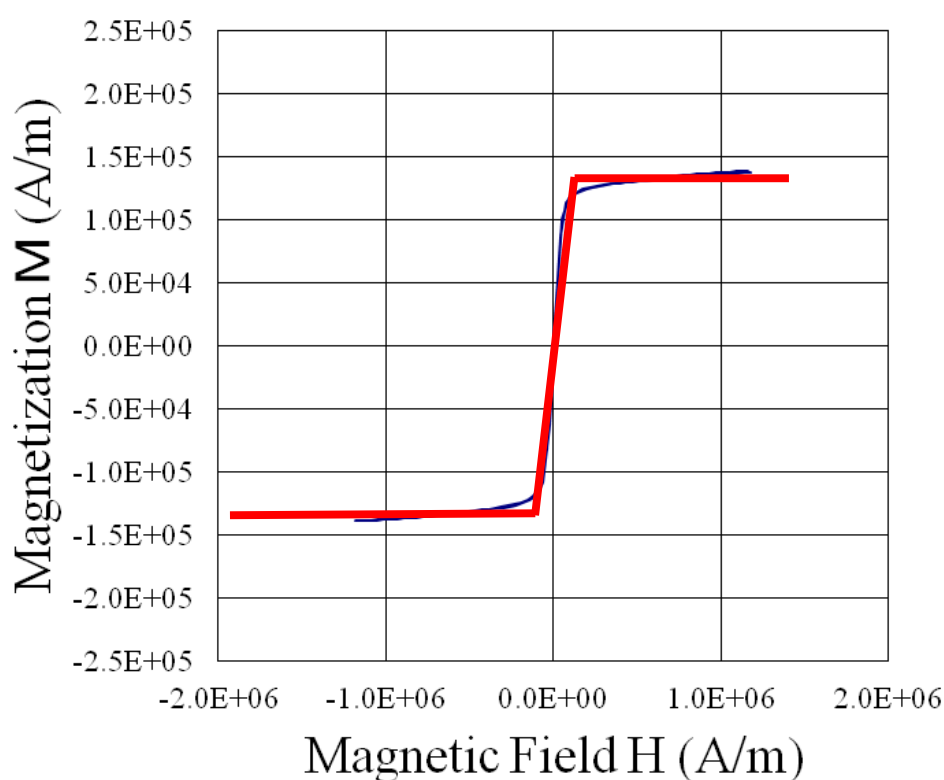


図 5-27 粒子挙動解析に用いる  $M-H$ カーブ



解析条件は、励磁速度 2.7 T/min、初期磁化率は 1.5 – 3.5 の粒子を 20 個投入、周囲流体は水（鉛直上向きに初期速度 1 mm/s）、粒子径は 10  $\mu\text{m}$ （密度 2000  $\text{kg/m}^3$ ）とした。ここで、飽和磁束密度はいずれの粒子も 0.1 T とした。図 5-28（左）には、磁界解析に用いた解析モデルを、図 5-28（右）にはそれによって発生する磁界分布の一例を示した。これらの条件にて、前節で示した手順によって磁界-粒子／流体の一方向連成解析を実施した。

#### 5.3.2.4 磁気飽和を考慮した磁性微粒子挙動解析手法の検証

図 5-29 に前節で用いた磁気飽和考慮なしの従来のアルゴリズムによる計算結果と、図 5-30 には磁気飽和考慮ありのアルゴリズムによる計算結果をそれぞれ示した。磁気飽和ありの場合は、各粒子で磁気飽和が始まると磁気力の増加が減少することにより粒子吸引速度も減少する結果が得られた。磁気飽和なしの場合に比べて明確に、磁気飽和磁界前後での粒子応答性の違いが確認でき、アルゴリズムが機能していることを確認できた。

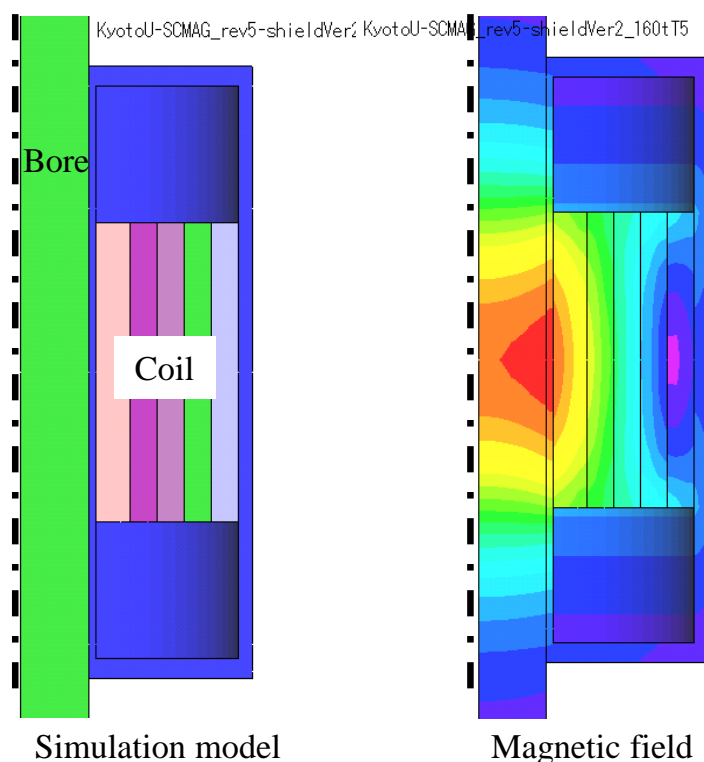
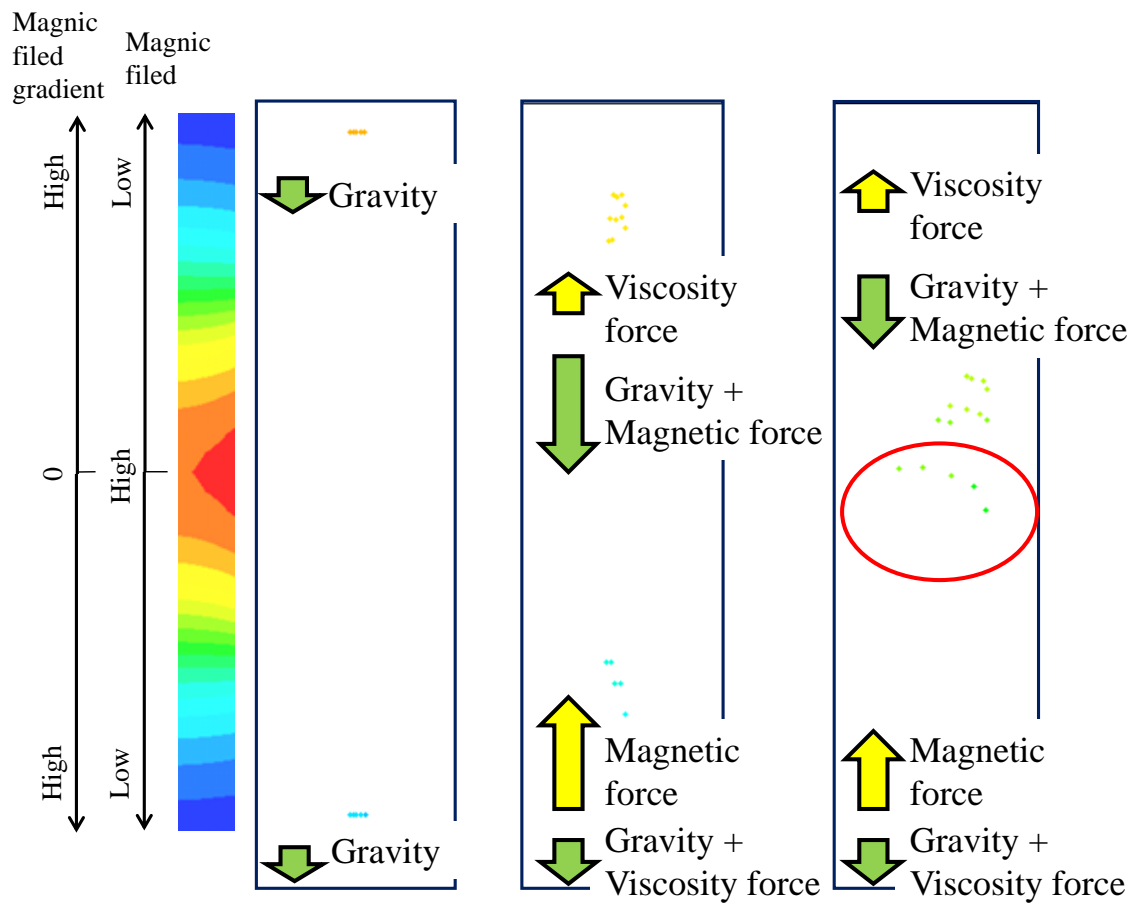
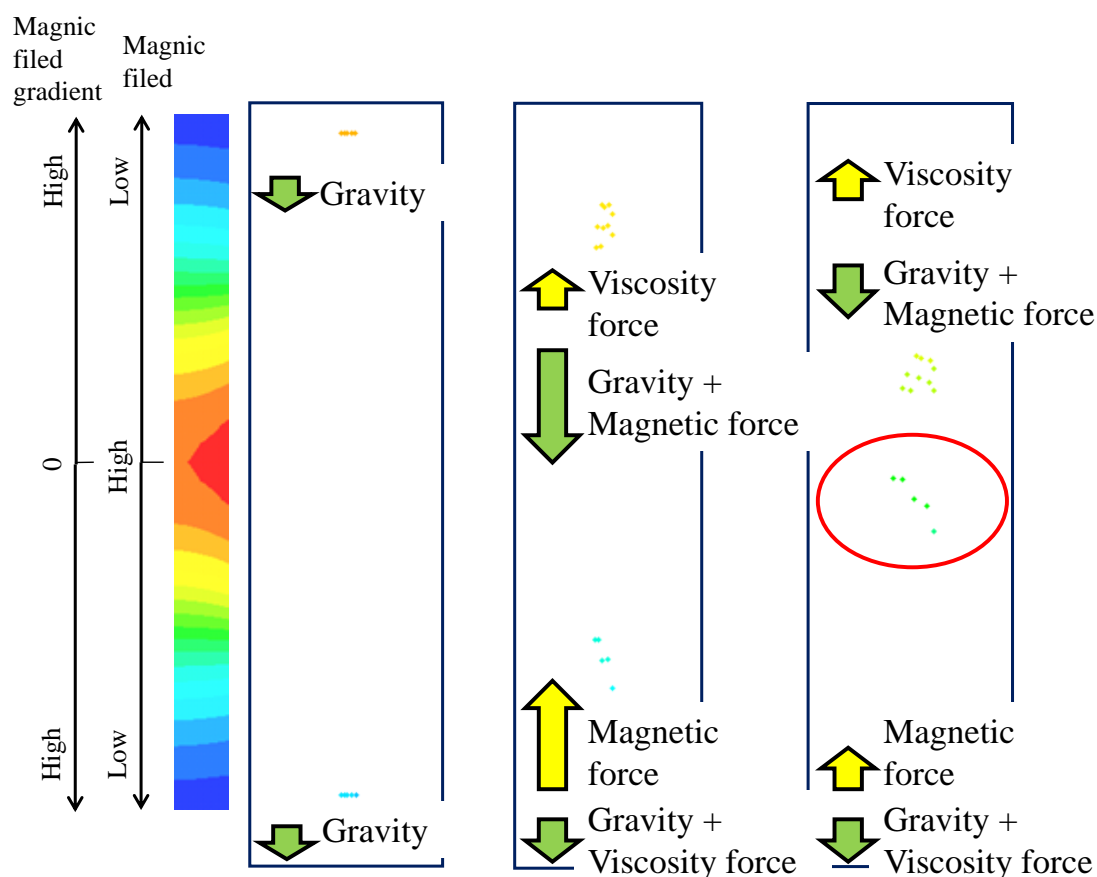


図 5-28 超伝導電磁石を対象とした解析モデル図(左)、及び磁界分布(右)の一例



Not considering saturation of magnetization

図 5-29 磁気飽和を考慮していない場合の粒子シミュレーション。図中、赤丸で囲われた箇所が図 5-30 と比較して顕著に挙動が異なる。



Considering saturation of magnetization

図 5-30 磁気飽和を考慮した粒子シミュレーション。図中、赤丸で囲われた箇所が図 5-29 と比較して顕著に挙動が異なる。

### 5.3.3 高磁界下における磁性微粒子の非接触磁気操作解析条件

本項では、磁気飽和が考慮可能となった粒子挙動解析を用いて、5.2 節で実施した強磁性微粒子を対象とした粒子挙動可視化試験で見られた典型的な 2 つの現象を粒子挙動解析で模擬する。模擬する現象は、①粒子観測地点において、流体の流れにそって上方に移動していた粒子が磁界の増大によって流体抵抗より磁気力が大きくなって流体の流れに逆らって下方に移動方向を変化させる現象、および②粒子がチェーン状にクラスタ化する現象とする。

解析条件は、流体を純水、その初期流速は図 5-14 を参考に、鉛直上向きに  $250 \mu\text{m/s}$  とする（解析での初期粒子速度も流体と同じ鉛直上向きに  $250 \mu\text{m/s}$  とする）。磁性微粒子の粒子径は  $10 \mu\text{m}$  とする。磁性微粒子の磁化率は 2.29、飽和磁化は  $137709 \text{ A/m}$  とする。投入する

磁性微粒子数は 60 個、それらの初期座標は、水平座標を  $x, y$  軸とし、垂直座標を  $z$  軸とすると、 $x = (0, 100, 200, 300, 400 \text{ } \mu\text{m})$ ,  $y = (0 \text{ } \mu\text{m})$ ,  $z = (118.6, 118.7, 118.8, 118.9, 119.0, 119.1, 120.0, 120.1, 120.2, 120.3, 120.4, 120.5 \text{ } \mu\text{m})$ とした。

#### 5.3.4 高磁界下における磁性微粒子の非接触磁気操作解析結果

観測地点 ( $z = 120 \text{ mm}$ ) 付近では、磁性微粒子の U ターンが見られないため、流体（及び磁性微粒子）の初期速度を  $150 \text{ } \mu\text{m/s}$  に変更した結果、図 5-31 に示すように、励磁開始から 17 s 後 (0.09 T) に粒子群が約 1.5 mm 上方まで移動する間に粒子速度が  $150 \text{ } \mu\text{m/s}$  から  $0 \text{ } \mu\text{m/s}$  へと減速し、その後下方へ向かって粒子速度が加速される現象が解析でも得られた。この解析条件では、粒子間の最短距離が  $100 \text{ } \mu\text{m}$  であったが粒子凝集は観察されず、むしろ粒子が下方に向けて加速される間に粒子間距離が磁気勾配と磁束密度の変化の影響で広くなる傾向が見られた。

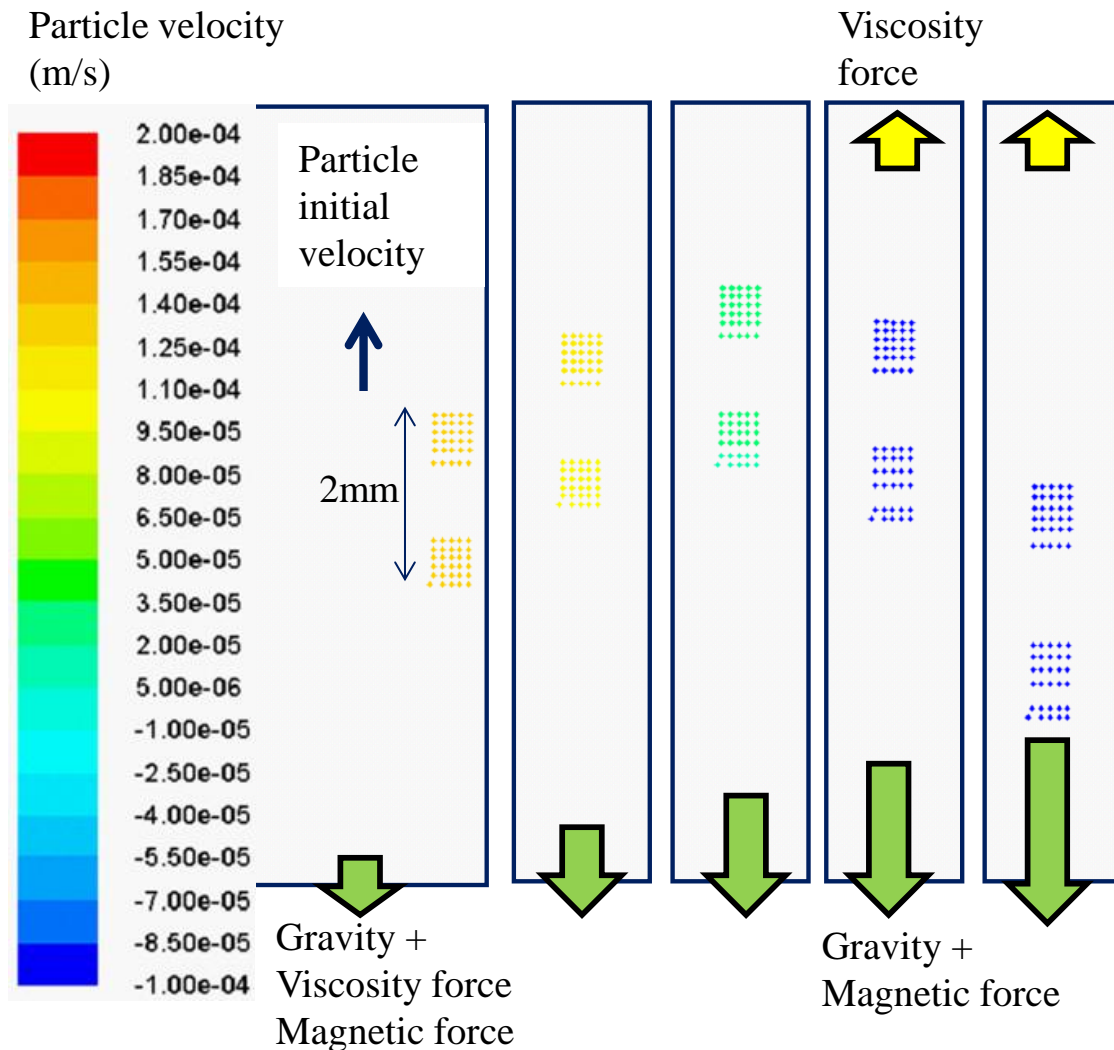


図 5-31 強磁性微粒子を対象とした粒子挙動解析。最小粒子間距離は  $100\ \mu\text{m}$ 。粒子に作用する磁界が大きくなるにしたがい下向きの磁気力が大きくなり、やがて流体抵抗力によって上向きに移動していた粒子群は下方に吸引される。粒子間距離が  $100\ \mu\text{m}$  では磁性微粒子のクラスタ化は見られない。

次に、クラスタ化する状態を粒子挙動解析にて再現する。粒子間距離が  $100\ \mu\text{m}$  であった前述の解析では粒子のクラスタ化が見られなかったため、初期の粒子間距離を狭くする。図 5-32 に示した解析結果では、磁性微粒子の初期座標は、第一粒子群の  $x, y, z$  座標がそれぞれ  $x = (0, 50, 100, 150, 200\ \mu\text{m})$ ,  $y = (0\ \mu\text{m})$ ,  $z = (119.25, 119.30, 119.35, 119.40, 119.45, 119.50\ \text{mm})$  で、第二粒子群の  $x, y, z$  座標がそれぞれ  $x = (0, 30, 60, 90, 1200\ \mu\text{m})$ ,  $y = (0\ \mu\text{m})$ ,  $z = (118.95, 118.98, 119.01, 119.04, 119.07, 119.1\ \text{mm})$  とした。すなわち、第一粒子群（上）は粒子間距離が上下左右とも  $50\ \mu\text{m}$  であり、第二粒子群（下）は粒子間距離が上下左右とも  $30\ \mu\text{m}$

となっている。流体初期速度と粒子初期速度は  $150\ \mu\text{m/s}$  とした。図 5-31 と同様に約  $1.5\ \text{mm}$  上昇した後に下方への磁気吸引力が上方への流体抵抗力を上回り粒子群が下降を始めた。36 s 後には粒子間距離が  $100\ \mu\text{m}$  の場合である図 5-31 のケースと異なり上下左右の粒子間が顕著に狭まっており、103 s 後には第一群と第二群の粒子群ともにチェーン状にクラスタ化している状態が確認された。チェーン状にクラスタ化する際の特徴である磁界を印加している方向にクラスタ化が進行し、直交方向にはチェーン状のクラスタが相対的に形成されにくいという状態が粒子挙動解析においても傾向が一致している。なお、図 5-32 の条件では、外部磁界によって磁性微粒子に作用する磁気力に比べて、近接磁性微粒子によって作用する粒子間磁気力が非常に小さいために、チェーンクラスタ化が磁気駆動距離に比べてゆっくりと進行したものとする。

本研究では、粒子間に作用する近接磁性微粒子による粒子間磁気力は粒子間距離がそれぞれの粒子の半径の和より小さくなると粒子間磁気力を 0 とみなす、という方法で粒子結合を表現しており、衝突による反発力や粒子間の摩擦力などは考慮していない。そのため、周囲の条件や粒子に作用している慣性力によっては、粒子同士で振動挙動を続けることになる。粒子結合のモデル化については今後の改善が望まれる。

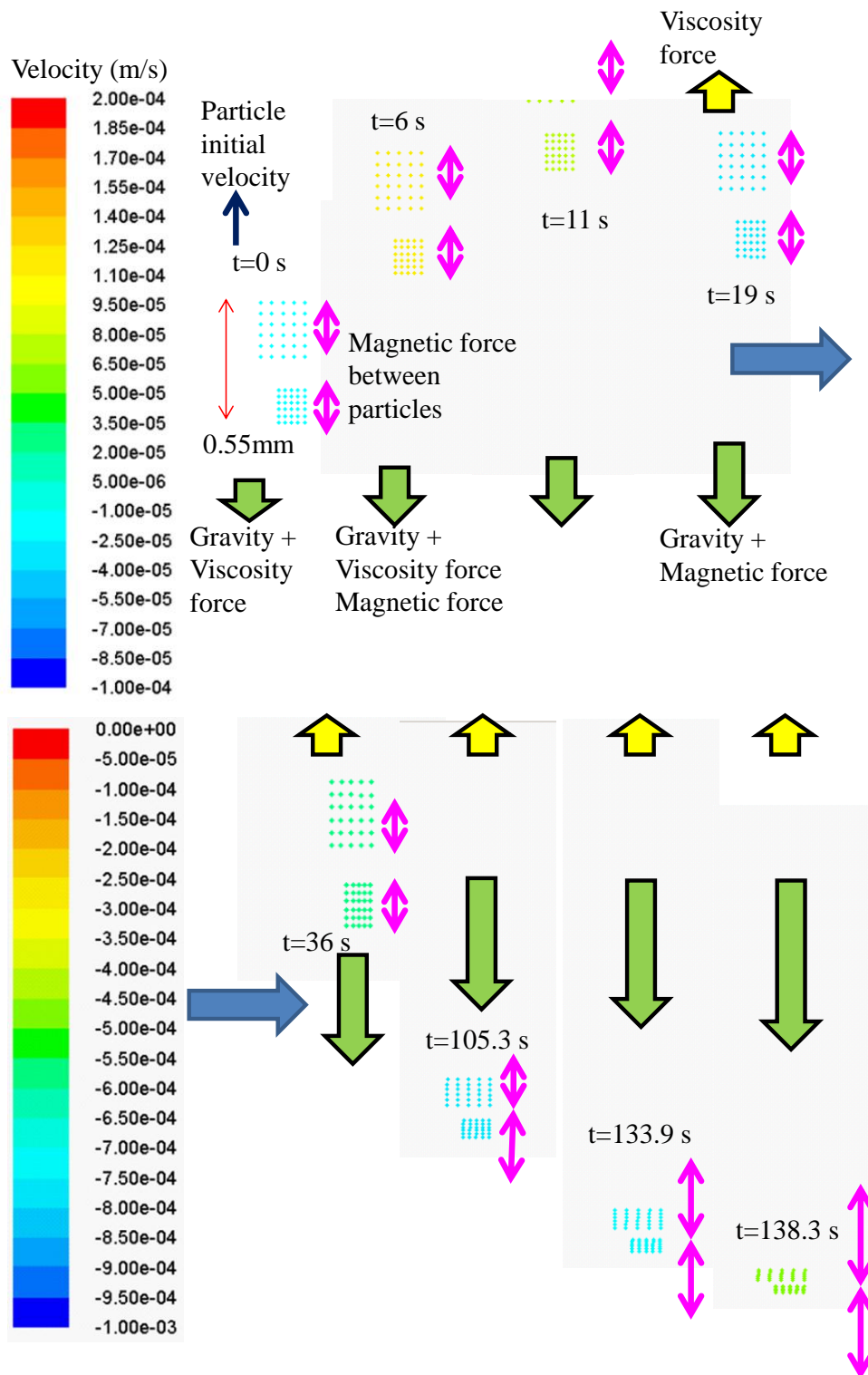


図 5-32 強磁性微粒子を対象とした粒子挙動解析。最小粒子間距離 30  $\mu\text{m}$ 。粒子間距離を 100  $\mu\text{m}$  から 30  $\mu\text{m}$  に近づけると磁界の増加にしたがってチェーンクラスタ化する様子が解析でも再現された。

## 5.4 本章のまとめ

本章では、磁性微粒子の磁化が磁界の大きさに応じて未飽和状態から飽和状態に遷移する領域において非接触磁気駆動する際の磁性微粒子挙動を把握するために、磁界発生装置として常伝導電磁石では発生できない高い磁界を発生できる超伝導電磁石を用いた実験を実施した。高い磁界によって磁性微粒子に作用する磁気力が大きくなるため、マイクロオーダーの強磁性微粒子のみならず、磁化の弱い磁性微粒子（ナノオーダー磁性微粒子など）も粒子挙動観察の対象とした。はじめに、第 2 章で検討した可視化手法に基づき、狹隘かつ遠方な空間である超伝導電磁石ボア内に対して適用可能な可視化システムを構築し、粒子挙動を実験的に把握した。市販の磁界解析コードと熱流体解析コードを連携させた解析方法を用い、超伝導電磁石発生磁界下において磁化が未飽和から飽和状態に遷移する領域で粒子挙動解析を実施し、実験結果と比較することで粒子挙動を示す要因を把握した。以上、実験と解析を組み合わせ、ナノからマイクロオーダー、及び未飽和から飽和状態に遷移する領域において磁性粒子の非接触磁気駆動の可能性や課題を示すことを目指し、以下のような結果を得た。

- 1) 超伝導電磁石の発生する磁界領域が超伝導コイルに囲まれた狹隘な空間となっている点、カメラから遠方である点、高磁界にさらされていることによる電子機器の電磁干渉性の点、に対する対策としてボアスコープを併用して結像位置を約 300 mm 延長し、高速カメラ周囲には磁気シールドを設置した。これらの可視化構成によって、粒子循環用ポンプによる流速制御下のナノ～マイクロオーダー磁性微粒子の挙動をレーザの散乱光をとらえることにより観察できることを示した。
- 2) 300 nm – 300  $\mu$ m の粒子径分布を持つフェライト系磁性微粒子（平均粒子径は 12  $\mu$ m）を用いて、超伝導電磁石発生磁界下における磁性微粒子の磁界応答性について調べた。励磁して 10 – 20 s でチェーン状にクラスタ化する現象が観察され、それ以降は上方へ向かう流体の流れによる流体抵抗に勝って磁気力によって下方へ引き戻される現象をとらえることができた。用いた磁性微粒子は 0.05 – 0.1 T で磁化が飽和するため、粒子速度と磁束密度との相関を調べた結果、流体抵抗によって上方へ運ばれる磁性微粒子の粒子速度が顕著に変化することを示すことができた。
- 3) 粒子循環用ポンプの駆動を停止し流れと超伝導電磁石発生磁界の無い状態で 20 分静置し重力の大きなマイクロオーダー以上の粒子を完全に沈降させて、観測位置に浮遊し続



けている  $1\text{ }\mu\text{m}$  以下と想定される磁性微粒子に対して超伝導電磁石による磁界を作用させて、粒子速度と磁束密度との相関関係を調べた。その結果、励磁から約  $20\text{ s}$  後、すなわち約  $0.05\text{ T}$  以上から磁性微粒子が下方へ磁気吸引される状況が観察され、少なくとも  $0.5\text{ T}$  で約  $100\text{ }\mu\text{m/s}$  で駆動可能であることがわかった。

- 4) フェライト系磁性微粒子に比較して約  $1/100$  の弱い磁化を持つ磁性微粒子を用いて、超伝導電磁石発生磁界下における磁性微粒子の磁界応答性について調べた。粒子循環ポンプにて上方へ粒子を輸送した状態で超伝導電磁石による励磁を行った結果、流体の流れに逆らって下方へ磁気力によって吸引される磁性微粒子が観測され、それらの粒子速度と発生磁束密度との間に線形の関係が見られた。最大磁束密度 ( $1.69\text{ T}$ ) で最大磁気勾配 ( $19.9\text{ T/m}$ ) の条件下では、約  $20\text{ }\mu\text{m/s}$  で非接触磁気駆動が可能であることがわかった。一方、磁化率が相対的に小さいために、フェライト系磁性微粒子のようなチェーン状にクラスタ化する状態はほとんど観察されなかった。
- 5) 第 4 章で用いた磁気駆動用電磁石による現状性能を考察し、ナノオーダー磁性粒子の非接触磁気把持を可能とするための装置仕様について検討した。その結果、粒子径  $500\text{ nm}$  のフェライト系磁性微粒子を非接触磁気把持する条件として、磁極間距離と磁極面積の縮小を実現することで、現状の磁気駆動用電磁石の発生可能磁気力を 5 倍～6 倍増加させることが少なくとも必要であることがわかった。今後ナノオーダーを含めて磁性微粒子を精度良く非接触磁気駆動するために、ナノオーダー磁性微粒子に作用すると考えられる力の評価、及びそれを駆動させるための磁気駆動用電磁石の改良が望まれる。
- 6) 粒子挙動解析は基本的に既存の解析コードを併用した。すなわち、磁界解析では **JMAG** を、流体解析では **FLUENT** を用い、必要な物理量を受け渡すインターフェースプログラムと **FLUENT** 用ユーザーサブルーチン（磁気力、粒子間力、及び磁気飽和の考慮）を本研究の中で構築することで磁性微粒子の非接触磁気駆動に関する解析検討を可能とした。
- 7) 飽和領域を考慮可能とするために粒子挙動解析のアルゴリズムの改良を行い、超伝導電磁石発生磁界下における磁性微粒子挙動可視化試験で見られた現象について、解析による再現を試みた。第 5.2 節で示したように、流速に逆行して磁気吸引されるケースとチェーン状にクラスタ化するケースを模擬した結果、磁性微粒子挙動試験と同様な傾向の結果を得ることができた。しかしながら、チェーン状にクラスタ化する現象をより正確

に模擬するためには粒子結合のモデル化についてさらなる改善が望まれる。

## 参考文献

- 1) S. Tokura, M. Hara, N. Kawaguchi, J. Izawa, and N. Amemiya: “Visualization of magnetic microparticles in liquid and control of their motion using dynamic magnetic field.”, J. Appl. Phys., Vol. 107, No. 9, 09B521 (2010)
- 2) E. P. Furlani: “Analysis of particle transport in a magnetophoretic microsystem.”, J. Appl. Phys., Vol. 99, No. 2, 024912 (2006)

## 第 6 章 総括

磁性体である磁鉄鉱は紀元前から産出されており、鉄を引き付けることがすでに知られていた。一方で、磁性体に関する体系的な研究としては 17 世紀初めのウィリアム・ギルバートによる「磁石論」が有名である。工学的には 19 世紀末のヴォルデマール・ポールセンによって磁気記録の原理が明らかにされて以降、磁気記録技術が急速に発展し、近年では高密度磁気記録媒体への応用が期待されるナノ磁性微粒子の物性や製造法に関する研究など数多く報告されている。また、ナノ～マイクロオーダーの磁性体は印刷機に使われるトナーのキャリア、あるいは汚泥に磁性体を混合させ浄化する磁気分離などにも応用されている。さらに、近年では薬と複合化させて磁気力で患部に運ぶドラッグデリバリーや DNA・タンパク質・ウィルス・細胞と複合化させて検出や培養する技術などバイオ・医療分野における応用を想定した様々な磁性微粒子の研究が報告されており、磁性微粒子の多次元的な磁気駆動技術が求められている。

このような応用では、磁性体（磁性微粒子など）には外部磁界によって磁気力が作用し、ナノ～マイクロオーダーの磁性微粒子は主に流体中で扱われる。ナノ～マイクロオーダーの磁性微粒子を非接触で磁気駆動する場合、外部磁界で生じる磁気力が小さいため、相対的に重力や浮力の他に流体抵抗力、磁気トルク、粒子間に作用する静電気力、摩擦力、あるいは磁気双極子モーメントによる磁界、ブラウン運動などの影響を受けやすい。また、特にナノオーダーの粒子は自然凝集する性質を持つ。さらに、磁性微粒子の物性や形状や相対位置などによって磁性微粒子に対する作用力の影響度が変化する。そのため、ナノ～マイクロオーダーの磁性微粒子挙動を可視化する技術、磁性微粒子の挙動に影響する磁気力以外の力をリアルタイムに計測する技術、さらに磁界／磁気勾配を時間的・空間的に制御し磁性微粒子を磁気駆動する技術のいずれが欠けても磁性微粒子単体（あるいは微小クラスタ）を想定通りに非接触磁気駆動することはできない。これまでの先行研究では、これらの技術要件を全て満たした実験を行うことが困難であったために、数値解析を利用した理論的な検討が主体となっており、粒子単体（あるいは微小クラスタ）の挙動の実測に基づいた非接触磁気駆動の実例はない。

そこで本研究では、磁気駆動用電磁石の磁極間の狭隘な空間に適用可能な、個々の磁性微粒子や微小クラスタの可視化技術を構築し、粒子径、粘度、流速、磁界強度、磁気特性、濃度（粒子間距離）等の値が変化した場合の粒子挙動や粒子に対する作用力を体系的に明

らかにすること、そしてそれらの知見に基づいた、流体中のナノ～マイクロオーダーの磁性微粒子の選択的な磁気ガイドや結合した磁性微粒子の磁気分離、または磁気捕集後の磁気攪拌による粒子分散といった非接触磁気駆動を実証することを目的とした。

本論文では第 2 章において、外部磁界作用下で狭隘な空間におけるナノ～マイクロオーダーの磁性微粒子挙動をリアルタイムに可視化する光学システムを検討した。ここで、時間的に変動する磁界下において粒子挙動が観察可能な可視化手法とするために、磁界発生装置と光学機器との設置上の空間的な干渉や、磁界発生装置からの漏えい磁界による光学電子機器に対する干渉を回避可能とすることが課題であった。また、磁性微粒子がシャーレなど静置された状態でなく、三次元流体中に浮遊、流動している状態を可視化することも重要であった。さらに、第 5 章を除き、本論文全体にわたる実験的手法では、マイクロオーダーの磁性微粒子を主に対象としたが、将来的にナノオーダーの磁性粒子の非接触磁気駆動を検討するために、可視化手法としては回折光を観察する白色光源による方法だけでなく、光源の波長以下のナノオーダー磁性粒子の散乱光を観察して粒子挙動をとらえることが可能なレーザ光源による方法の二つを採用した。これによって、白色光源による方法では  $1\text{ }\mu\text{m}$  以上、レーザ光源による方法では最小で  $30\text{ nm}$  の粒子挙動の可視化を実証した。また、白色光源を用いた方法では、時間変動する磁界下においても可視化可能であることも実証した。以上から、第 3 章以降における磁性微粒子の非接触磁気把持、作用力評価や非接触磁気操作に必要な可視化手法に関する基礎的な知見を得ることができた。

第 3 章では、前章で実証した磁性微粒子の可視化手法に加え、水平／垂直方向に空間的かつ時間的に変動可能な磁界を発生させることができる磁気駆動用電磁石を製作した。製作した磁気駆動用電磁石の磁界測定を行ったところ、電流 ( $1.2 - 12\text{ A}$ ) に比例した磁界分布となっていること、及び目標とした磁束密度と磁気勾配を満たしている（磁束密度: コイル電流  $24\text{ A}$  の時が約  $0.1\text{ T}$ 、磁気勾配: コイル電流  $24\text{ A}$  の時が約  $4\text{ T/m}$ ）ことが確認できた。これらを組み合わせることで、磁性微粒子を含んだ流体を封止したセル（流体セル）中のマイクロオーダー磁性粒子の非接触磁気把持に成功した。また、この非接触磁気把持技術を応用し、磁性微粒子に作用する力や場の影響をリアルタイムに計測する手法を新たに確立した。流体セルの上下左右方向に設置した I 型電磁石への電流を独立に制御し、高速画像処理による粒子位置に関するフィードバック制御（PID 制御）によって三次元流体中に非接触磁気把持させ、磁気力との釣り合い状態を作り出し、求めたい作用力と磁気力とを比較することで磁性微粒子に作用する力をリアルタイム、かつ非接触で計測することに成功した。これによって、理論計算で評価しにくい流体抵抗力や、隣接する磁性微粒子が作る磁界による粒子間磁気力といった作用力が実験的手法にて評価可能となった。次に、第 4 章

においてより高度な非接触磁気操作に関する検討を行うに先立ち、流体セルの改造を行った。これまでは封入された流体セル中での磁性微粒子挙動が対象であったが、シリコーンチューブを介して循環ポンプを流体セルに連結することでセル内の流体の流速制御を可能とした。これによって流体抵抗や粒子間磁気力についてより詳細に作用力の評価を行った。すなわち、流速や粒子径、粘度などを変化させた場合の非接触磁気把持されている磁性微粒子に作用する各種の力を体系的に取得した。この結果から、マイクロオーダーの磁性微粒子に作用する支配的な力が何であるか、あるいはそのオーダーや影響を及ぼす範囲について知見を得ることができた。本章で構築した非接触磁気把持は、非接触磁気操作の基礎となる有用な技術であり、第 4 章以降においてさらなる改善に取り組んだ。なお、医療や産業分野等における磁性微粒子応用技術への適用を将来目標とするにあたり、実用的なレベルにて体系的に磁性微粒子の挙動を理解するためには、サイズはナノからマイクロオーダー、磁気特性は常磁性など弱い磁性から強磁性を対象として研究を行う必要がある。また、外部からの磁界の大きさに応じて粒子の磁化が未飽和状態から飽和状態に遷移することも考慮に入れる必要がある。第 3 章から第 4 章では発生可能な磁気力の制約から、サイズはマイクロオーダーのみを、磁気特性は強磁性体の未飽和状態のみを対象とした。

第 4 章では、体系的に明らかにした様々な条件下における粒子挙動や粒子に対する作用力の知見に基づき、非接触磁気操作に必要な力について把握した後、流体中のマイクロオーダーの磁性粒子の非接触磁気操作方法について検討した。対象とする磁性微粒子の周囲に近接粒子が存在しない場合では、異なった粒子径や流速や粘性条件下で計測された流体抵抗を粒子径と粘度で正規化した結果、流体速度相当の値と非接触磁気駆動に必要な磁気力との間には明確な比例関係が見られた。また、直線近似した傾きは粘度が大きくなるにつれて大きくなり、粘度が増すごとに非接触磁気操作に必要な磁気力が増加することが示され定性的な傾向と一致した。他方、近接粒子が存在する場合、マイクロオーダーの強磁性粒子を対象とする非接触磁気操作では、粒子間磁気力が小さい条件においては、流体抵抗が支配的になりこれに抗する磁気力が必要であった。粒子間距離が近くなるにしたがい粒子間磁気力が急激に増加し、粒子間磁気力に抗する力が支配的となる傾向が得られた。また、粒子間距離が 0.5 mm 以上離れている場合は重力に比べて無視できる程度の粒子間磁気力が作用する状態となり、磁性微粒子の非接触磁気操作時にはほとんど影響を及ぼさないことがわかった。このような知見をもとに、磁気ガイドや磁気分離、あるいは磁気捕集後の磁気攪拌による粒子分散の方法について検討した。流体中に浮遊、流動している磁性微粒子（微小クラスター）を対象に、高速画像処理による粒子座標を指標としたフィードバック制御で作用力のバランスを保ちながら駆動させることで、対象とした一粒子のみ

を選択的に任意の軌跡で磁気ガイド可能であることを示した。粒子サイズが異なる磁性微粒子が周囲に存在する状態で磁気ガイドを行った場合、粒子体積が 3.6 %異なる磁性微粒子ではほぼ同様な軌跡をトレースした。一方、粒子形状はもとより粒子体積が 20.9 %以上異なる磁性微粒子では磁気力の影響を受けてはいるものの、磁気力や流体抵抗や重力の粒子に対する影響度が異なり磁気ガイドされないことがわかった。また、磁気的な操作によって磁化されて凝集した磁性微粒子群に交番磁界を与えることで、一旦クラスタ化した磁性微粒子群を再現性よくクラスタ切断させる事ができた。クラスタ長の異なる磁性微粒子群を対象として励磁周波数とクラスタ切断の可否との相関を調べた結果、クラスタ長が短くなるほどに高い周波数で切断される傾向が得られ、1  $\mu\text{m}$  以下の磁性微粒子群をクラスタ切断するためには、50 Hz 以上の周波数で磁気的な振動を与える必要があることが示された。さらに、ここで見出した条件に基づき、磁気捕集によりガラスセル内で多数発生した巨大クラスタ粒子を、適切なパルス励磁により切断、分散できる可能性を示した。

第 5 章では、はじめに第 2 章で検討した可視化手法に基づき、狭隘かつ遠方な空間である超伝導電磁石ボア内に対して適用可能な可視化システムを構築した。そして、磁性微粒子の磁化が磁界の大きさに応じて未飽和状態から飽和状態に遷移する領域において非接触磁気駆動する際の磁性微粒子挙動を把握するために、磁界発生装置として常伝導電磁石では発生できない高い磁界を発生可能な超伝導電磁石を用いた実験を行った。高い磁界によって磁性微粒子に作用する磁気力が大きくなるため、マイクロオーダーの強磁性微粒子のみならず、磁化の弱い磁性微粒子も粒子挙動観察の対象とした。磁気飽和前後で粒子速度を指標として磁界との相関を調べた結果、磁化が飽和する前後にて粒子速度の変化率に顕著な違いが確認され、磁性微粒子の非接触磁気駆動時に考慮が必要である事が示された。今後ナノオーダーを含めて磁性微粒子を精度良く非接触磁気駆動していくためには、ブラウン運動が支配的な系にてナノオーダー磁性粒子に作用する力のオーダー評価、及びナノ粒子など磁化が小さい磁性微粒子を駆動させるための磁気駆動装置の改良が必要である。この章の後半では、可視化結果を検証するために粒子挙動解析手法の構築を行った。市販の磁界解析コードと熱流体解析コードを連携させた解析方法を用い、超伝導電磁石発生磁界下において磁化が未飽和から飽和状態に遷移する領域で粒子挙動解析を実施し、実験結果と比較することで粒子挙動を示す要因を把握した。実験と解析を組み合わせ、ナノからマイクロオーダー、及び未飽和から飽和状態に遷移する領域において磁性粒子の非接触磁気駆動の可能性や展望を示すことができた。

以上、本研究では、磁界作用下におけるナノからマイクロスケール、及び未飽和から飽和領域に至る磁性粒子を対象として、3 次元流体中で浮遊や流動している磁性微粒子の可視

化手法、および非接触磁気把持を基にした作用力評価手法によって、様々な条件下における粒子挙動や粒子に対する作用力を体系的かつ定量的に明らかにした。また、それらの知見に基づき、高速画像処理と粒子座標を指標とした位置制御とを組み合わせ、周辺に磁性微粒子が多数存在する環境下での選択的な磁気ガイドやクラスタ化した粒子の磁気切断などの実現性やナノオーダーの磁性微粒子の非接触磁気駆動に向けた今後の展望を示すことができた点において本研究の工学的な意義は大きい。本成果は、医療や産業分野等における磁性微粒子の磁気力制御技術を発展させる一助となるものと考ええる。

# 謝辞

本研究を進めるにあたり京都大学大学院入学以来、終始懇篤なるご指導とご鞭撻を賜った京都大学大学院工学研究科雨宮尚之教授に謹んで深甚なる感謝の意を表します。また、貴重なご教示、ご指導を賜った京都大学大学院工学研究科引原隆士教授ならびに松尾哲司教授に謹んで感謝の意を表します。多くの有益なご助言を賜った京都大学大学院工学研究科中村武恒准教授に深く感謝の意を表します。

本研究を行うにあたり、終始暖かいご教示と激励を賜った株式会社 IHI 技術開発本部エグゼクティブフェロー綾部統夫様、主席技監上松和夫様、ならびに化学システム開発部部长（元、応用理学研究部部长）久保田伸彦様に深く感謝の意を表します。また、常に親切なるご指導を賜った株式会社 IHI 技術開発本部応用理学研究部主査原正一様、主査河口紀仁様、主査松尾貴寛様、生産技術部主査伊澤淳様に感謝の意を表します。株式会社 IHI 技術開発本部プロジェクト部に異動後も、本研究を遂行するためにご理解、ご支援賜りました株式会社 IHI 技術開発本部プロジェクト部部长村上弘記様、ならびに主幹新妻素直様に感謝の意を表します。

最後になりましたが、本研究を行うにあたりお世話になった株式会社 IHI 技術開発本部応用理学研究部諸氏、ならびに京都大学大学院工学研究科雨宮研究室諸氏に感謝致します。また、本論文を完成させるにあたり、終始理解と支援をしてくれた妻 冬美に深く感謝の意を表します。

2014 年 3 月

徳良 晋



# 研究業績

## 1. 本研究に関する論文リスト

- 1) S. Tokura, M. Hara, N. Kawaguchi, J. Izawa, and N. Amemiya: “Visualization of magnetic microparticles in liquid and control of their motion using dynamic magnetic field.”, J. Appl. Phys., Vol. 107, No. 9, 09B521 (2010)
- 2) S. Tokura, M. Hara, N. Kawaguchi, and N. Amemiya: “Contactless grasp of a magnetic particle in a fluid and its application to quantifications of forces affecting its behavior.”, J. Magn. Magn. Mater., Vol. 353, pp. 82 – 89 (2014)
- 3) S. Tokura, M. Hara, N. Kawaguchi, and N. Amemiya: “The behavior of nano- and micro-magnetic particles under a high magnetic field using a superconducting magnet.”, IEEE Trans. Appl. Super., Vol. 24, No. 3 (2014), Accepted for publication
- 4) S. Tokura, M. Hara, N. Kawaguchi, and N. Amemiya: “Contactless magnetic force control of magnetic particles in a fluid.”, J. Magn. Magn. Mater., Submitted

## 2. その他、本研究に関する講演リスト

- 1) Contactless grasp of a magnetic particle in a fluid and contactless measurement of forces affecting the particle, APS March Meeting 2012, February 27th – March 2nd, 2012, Boston, MA, USA
- 2) 徳良 晋, 原 正一, 河口 紀仁, 雨宮 尚之: “磁気ビーズの医療への応用研究 -磁性微粒子の選択的な磁気駆動や分散制御 -”, 平成 26 年電気学会全国大会, 講演予定